

# Messung kohärenter Streulängen mit Christiansen-Filtern für Neutronenstrahlung

L. KOESTER und K. KNOPF

Physik-Department der Technischen Universität München

(Z. Naturforsch. **26 a**, 391—399 [1971]; eingegangen am 3. Dezember 1970)

Herrn Professor Dr. H. Maier-Leibnitz zum 60. Geburtstag gewidmet

## Measurements of Neutron-Scattering-Amplitudes using the Christiansen-Filter-Technique

By means of Christiansen-Filters it is possible to make use of the high accuracy achieved for the scattering amplitudes of liquids also for solids in form of powders. We investigated the scattering law for the small angle scattering of Neutrons by Christiansen-Filters and found a good agreement between theory and experiment. Using powders of several elements we could measure the scattering amplitudes of the elements with an uncertainty within  $\pm 0.2\%$  to  $\pm 1\%$ .

We got for the bound atoms of

Al: $a = (3.449 \pm 0.009) \text{ F}$ ;	Nb: $a = (7.11 \pm 0.04) \text{ F}$ ;
Cr: $a = (3.532 \pm 0.010) \text{ F}$ ;	Te: $a = (5.43 \pm 0.04) \text{ F}$ ;
Sb: $a = (5.641 \pm 0.012) \text{ F}$ ;	and Ta: $a = (6.91 \pm 0.07) \text{ F}$ .
Si: $a = (4.159 \pm 0.006) \text{ F}$ ;	

## 1. Einleitung

Eine elementare Eigenschaft von Atomen ist ihre Wechselwirkung mit langsamen Neutronen, wie sie im Fall der elastischen Streuung durch die kohärente Streulänge  $a$  beschrieben wird. Die Fähigkeit der Materie zur kohärenten Neutronenstreuung hat eine Reihe von Erscheinungen, wie Beugung, Brechung und Interferenz zur Folge, die im Prinzip identisch sind mit entsprechenden Phänomenen der Lichtoptik. Wissenschaftliches Interesse findet die kohärente Streulänge als elementare Konstante von Atomkernen, als die Grundgröße der Neutronenoptik und bei der Anwendung elastischer Neutronenstreuung zur Strukturuntersuchung an Materie.

Die klassischen Meßmethoden gründen sich auf die Bragg-Streuung von Neutronen an kristallinen Körpern mit genau bekannter Struktur und auf die Totalreflexion von Neutronen an Materie. Mit ihnen konnten Genauigkeiten von der Größenordnung Prozent um den Wert der Streulänge erreicht werden. Als beim Fortschritt der Theorien des Kernaufbaus und des festen Körpers genauere Werte für die Streulängen wünschenswert und sinnvoll erschienen, wurden neue Methoden für Präzisionsmessungen entwickelt, die ihre Wurzeln in den ältesten Prinzipien der Mechanik und Optik haben.

Über die Messung der Reflexion von Neutronen im Neutronen-Schwerkraft-Refraktometer nach MAIER-LEIBNITZ<sup>1</sup> wurden Genauigkeiten innerhalb  $\pm 0,02\%$  für die Streulänge der Substanz des Spiegels erreichbar<sup>2</sup>.

Als Spiegel sind allerdings nur Flüssigkeitsoberflächen geeignet. Durch Anwendung der Technik des Christiansen-Filters ließ sich die hohe Genauigkeit für flüssige Stoffe auch für die Bestimmung der Streulänge fester Körper nutzen<sup>3</sup>.

Das Christiansen-Filter besteht aus der Mischung eines körnigen Pulvers mit einer Flüssigkeit. Durch eine solche Anordnung wird ein Neutronenstrahl zerstreut, wenn die Streulängendichten von Pulver und Flüssigkeit verschieden sind; sind sie gleich groß, dann verschwindet die Streuung.

Dies konnte durch Verändern der Streulänge der Flüssigkeit mit guter Genauigkeit ( $\pm 0,2\%$ ) festgestellt werden<sup>3</sup>.

Die dabei gemessene Neutronenstreuung ist eine Streuung in Vorwärtsrichtung (Kleinwinkelstreuung), für deren Nachweis das Neutronen-Schwerkraft-Refraktometer benutzt wurde. Dies erforderte verhältnismäßig große Filter und lange Meßzeiten.

Wir werden im folgenden zeigen, daß sich bei gleich guter Genauigkeit diese Nachteile vermeiden

Sonderdruckanforderungen an Priv.-Doz. Dr. L. KOESTER, FRM Reaktorstation Garching, Techn. Universität München, Physik-Department, D-8046 Garching bei München.

<sup>1</sup> H. MAIER-LEIBNITZ, Z. Angew. Phys. **14**, 738 [1962].

<sup>2</sup> L. KOESTER, Z. Phys. **182**, 328 [1965]; **198**, 187 [1967]. — N. NÜCKER, Z. Phys. **227**, 152 [1969].

<sup>3</sup> L. KOESTER u. H. UNGERER, Z. Phys. **219**, 300 [1969].



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.

lassen, wenn die Kleinwinkelstreuung mit einem geometrisch gut kollimierten Strahl langsamer Neutronen gemessen wird.

## 2. Kleinwinkelstreuung von Neutronen

Die bei der Durchstrahlung inhomogener Systeme (z. B. Pulver) auftretende Kleinwinkelstreuung ist für Neutronenstrahlung ausführlich von WEISS<sup>4</sup> behandelt und experimentell untersucht worden, so daß hier nur die grundlegenden Eigenschaften herauszustellen sind:

Ein kollimierter Neutronenstrahl mit der Halbwertsbreite  $\beta_0$  und einem vollen Divergenzwinkel  $\omega_0$  erleidet durch die Kleinwinkelstreuung eine Verbreiterung auf eine Halbwertsbreite  $\beta$  mit entsprechendem Winkel  $\omega$ :

$$\omega^2 = \omega_0^2 + \omega_s^2 \quad \text{und} \quad \omega_s^2 = \omega_0^2 - \omega^2, \quad (1)$$

wobei  $\omega_s$  den vollen Streuwinkel beschreibt.

Das gilt für Strahlprofile in Form von Gauss-Kurven, wie sie in guter Näherung durch die Kleinwinkelstreuung entstehen. Der ursprüngliche Strahl hat in der Regel keine Gaussverteilung, so daß für kleine Streuwinkel ( $\omega_s < \omega_0$ ) die Entfaltung nach (1) mit einer Unsicherheit behaftet ist.

Entscheidende Größe für die Streuung an kugelförmigen Bereichen ist die Phasenverschiebung  $\varrho$ , die eine Neutronenwelle der Wellenlänge  $\lambda$  beim Durchgang durch den Bereich von Radius  $R$  erleidet:

$$\varrho = (2\pi/\lambda) 2R |n_F - n_P|.$$

$n_F$ ,  $n_P$  sind die Brechungsindizes von Pulverkorn (P) und Umgebung (Flüssigkeit F). Mit dem Zusammenhang zwischen Brechungsindex  $n$  und Streulänge  $a(1 - n^2 = \lambda^2 N a / \pi)$  wird daraus für Materie mit  $N$  Atomen/cm<sup>3</sup>:

$$\varrho = \lambda \cdot 2R |\Delta N a|, \quad (2)$$

wenn  $\Delta N a$  für die Differenz  $(N a)_F - (N a)_P$  steht. Nach Weiss wird der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  für die Streuung an einem Korn (die Interferenz zwischen den von allen Körnern ausgehenden Streuwellen wird vernachlässigt) für Phasenverschiebungen

$$\varrho \ll 1 \text{ (Beugung):} \quad \sigma_1 = 2\pi R^2 (\varrho/2)^2$$

und für

$$\varrho \gg 1 \text{ (Brechung):} \quad \sigma_3 = 2\pi R^2.$$

Bei der Beugung an einzelnen Körnern wird das Neutron in einen Winkelbereich

$$\omega_1 = 3,5 \cdot \lambda / 2\pi R \quad (3)$$

abgelenkt (tan  $\omega$  = Halbwertsbreite des Strahls geteilt durch Abstand Filter-Detektor).

Der Anteil der gestreuten Neutronen für ein Filter der Dicke  $d$  mit  $N_P$  Körnern/cm<sup>3</sup> ist

$$s = 1 - \exp\{-N_P \sigma_1 d\} = 1 - \exp\{-\frac{1}{2} \mu \varrho^2\},$$

wenn  $\mu$  die Anzahl der von einem Neutron durchsetzten Pulverteilmchen angibt. Wird der Streuanteil groß ( $\frac{1}{2} \mu \varrho^2 > 1$ ), dann setzt Vielfachstreuung ein.

Sie führt für  $\varrho > 1$  zu einem größeren Streuwinkel  $\omega_2$  (wie in<sup>5</sup>):

$$\omega_2 \cong 5(\lambda^2/2\pi) |\Delta N a \sqrt{\mu}|$$

oder

$$\omega_2 \cong \omega_1 |\varrho \sqrt{\mu/2}|. \quad (4)$$

Im Brechungsfall  $\varrho > 1$  können die Neutronen neben der Brechung noch an der Grenzfläche des Korns reflektiert werden<sup>6</sup>. Das ergibt eine zusätzliche Strahlverbreiterung und einen Streuwinkel

$$\omega_3 \cong \omega_2 \cdot 0,67 B = \omega_1 \cdot 0,67 B |\varrho \sqrt{\mu/2}|. \quad (5)$$

Der Formfaktor  $B$  wurde berechnet für kugelförmige Teilchen von VON NARDORFF<sup>7</sup>:

$$B_a = (\frac{1}{2} + \ln 2 + \ln |2\pi/\lambda^2 \Delta N a|)^{1/2} \quad (6a)$$

von VINEYARD<sup>6</sup>:

$$B_b = (1 - \ln 2 + \ln |2\pi/\lambda^2 \Delta N a|)^{1/2} \quad (6b)$$

und für Körner mit ebenen Oberflächen

von WEISS<sup>4</sup>:

$$B_c = [2 \ln 2 (7 + \ln |8 \cdot 2\pi/\lambda^2 \Delta N a|)]^{1/2}. \quad (6c)$$

$B$  ist demnach zur schwach von der Differenz  $\Delta N a$  abhängig und unabhängig vom Vorzeichen der Differenz.

Das bedeutet, daß die Strahlverbreiterung nach (5) durch ein körniges Pulver in einem nicht zu dünnen Christiansen-Filter (mit  $\frac{1}{2} \mu \varrho^2 > 1$ ) direkt proportional zu  $|\varrho|$  und damit zu  $|\Delta N a|$ , zum Betrag des Unterschiedes zwischen den Streulängen von Pulver und Flüssigkeit ist. Ist andererseits die

<sup>4</sup> R. J. WEISS, Phys. Rev. **83**, 379 [1951]. In dieser Arbeit hat Weiss die hier verfolgte Methode bereits angedeutet.

<sup>5</sup> D. L. DEXTER u. W. W. BEEMAN, Phys. Rev. **76**, 1782 [1949].

<sup>6</sup> G. H. VINEYARD, Phys. Rev. **85**, 633 [1952].

<sup>7</sup> R. VON NARDORFF, Phys. Rev. **28**, 240 [1926].

Meßgröße „ $p$ “ der Kleinwinkelstreuung proportional dem Streuwinkel, dann gilt

$$p \cong \omega \propto \lambda^2 \cdot |\Delta N a \sqrt{\mu}|. \quad (7)$$

Die Streukurve  $p = f(\Delta N a)$  hat damit in der Umgebung des Minimums symmetrische lineare Flanken, deren Steilheit durch die Korrelation zwischen Meßgröße und Streuwinkel  $p = f(\omega)$ , durch die Wellenlänge  $\lambda$  und durch die Anzahl  $\mu$  der von einem Neutron durchstrahlten Körner bestimmt ist. Man kann daher aus beiden Flanken der Streukurve die Lage des Minimums  $(Na)_F$  der Streuung bei  $(Na)_F = (Na)_F (\Delta N a = 0)$  exakt bestimmen.

Durch Messen der Strahlverbreiterung  $\omega$  von Christiansenfiltern in Abhängigkeit von der Streulängendifferenz  $\Delta N a$  lassen sich außerdem die oben skizzierten Streugesetze vollständiger überprüfen als bisher.

### 3. Meßanordnung und Christiansen-Filter

Für die Messung der Kleinwinkelstreuung von Christiansen-Filtern haben wir an einem Neutronenleiter<sup>8</sup> des FRM<sup>9</sup> eine Anordnung aufgebaut, die in Abb. 1 skizziert ist. Der Neutronenstrahl des Leiters hat eine mittlere Wellenlänge  $\lambda = (13,5 \pm 0,5) \text{ \AA}$ , die

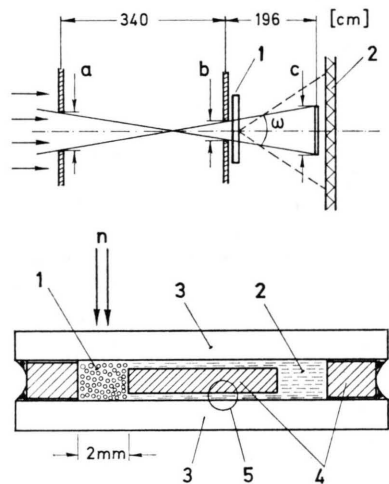


Abb. 1. Meßanordnung. Oberes Bild: Blendensystem und Strahlengang. 1. Christiansen-Filter, 2. Neutronenzählrohr. Blendenweiten:

I.  $a = 1,5 \text{ mm}$ ;  $b = 0,75 \text{ mm}$ ;  $c = 2,0 \text{ mm}$ ,

II.  $a = 0,8 \text{ mm}$ ;  $b = 0,4 \text{ mm}$ ;  $c = 1,1 \text{ mm}$ .

Unteres Bild: Querschnitt durch Christiansen-Filter. 1: Pulver; 2: Flüssigkeit; 3: Glasplatten; 4: Metallstreifen; 5: Spaltweite  $5 \dots 100 \text{ \mu m}$ .

wir durch Transmissionsmessungen an Gold- und Silberfolien bestimmt haben. Kollimiert wird der Strahl durch zwei Spalte a und b mit einer Höhe von 150 mm, die durch sehr genaue Wasserwaagen in die senkrechte Lage eingestellt und in ihr gehalten werden können. Vor dem Zählrohr ist ein Cd-Streifen angebracht, der ebenfalls durch eine Wasserwaage senkrecht eingestellt wird. Er ist auf einem exakt geführten Schieber montiert, mit dem er aus dem Strahl transportiert und in die alte Stellung zurückgebracht werden kann. Die Breite c dieses Strahlenfängers ist so bemessen, daß er den ungestreuten Neutronenstrahl fast vollständig sperren kann. Zwischen den Blenden läuft der Strahl durch evakuierte Rohre, die mit Fenstern aus Spiegelglas (zur Vermeidung von Kleinwinkelstreuung) verschlossen sind. Das Zählrohr hinter dem Strahlenfänger ist ein konventionelles  $\text{BF}_3$ -Zählrohr, 20 cm lang und 5 cm im Durchmesser. Es steht in einem Wassertank mit Borsäure-Zusatz zur Abschirmung.

Für unsere Messungen haben wir zwei Blendensysteme verwendet:

I. Ein System mit großer Neutronenintensität (Zählrate im ursprünglichen Strahl  $\cong 22\,000 \text{ Ipm}$ ) für die Messung von Strahlprofilen und für Messungen an kleinen Filtern und an Filtern mit größerer Absorption.

Blendenweiten:  $a = 1,5 \text{ mm}$ ,  $b = 0,75 \text{ mm}$ ,  $c = 2,0 \text{ mm}$ .  
Halbwertsbreite des Strahls bei c:  $1,13 \text{ mm}$ .

II. Eine Anordnung mit geringerer Strahldivergenz und Intensität (Zählrate im Strahl  $\cong 10\,000 \text{ Ipm}$ ) vor allem für Messungen an grobkörnigen Filtern mit geringer Absorption.

Blendenweiten:  $a = 0,8 \text{ mm}$ ,  $b = 0,4 \text{ mm}$ ,  $c = 1,1 \text{ mm}$ .  
Halbwertsbreite bei c:  $0,7 \text{ mm}$ .

Das Christiansen-Filter befindet sich unmittelbar hinter dem Hauptsplatt b. Der Querschnitt durch das Filter in Abb. 1 zeigt das Prinzip des Aufbaus:

Der Raum zwischen zwei Spiegelglas-Scheiben wird durch drei Metallstreifen aus Messing in zwei Kanäle aufgeteilt. Der Steg zwischen den beiden Kanälen ist dünner als der Abstand zwischen den beiden Glasplatten, so daß zwei Spalte entstehen, die die Kanäle miteinander verbinden. Diese Spalte sind so bemessen, daß das Pulver, das in dichter Packung in einen Kanal gefüllt wird, nicht entweichen kann. In den zweiten Kanal wird die Flüssigkeit gegeben, die durch die Spalte in den Pulverraum einzudringen vermag.

Wir haben die Experimente mit verschiedenen Filtergrößen ausgeführt. Die wesentlichen Maße sind die Höhe der Pulversäule (160 mm oder 70 mm) und die Dicke der Säule in Strahlrichtung (1 mm bis 3 mm). Das Pulvervolumen lag zwischen  $0,3$  und  $1 \text{ cm}^3$  für die hohen Säulen und bei  $0,2 \text{ cm}^3$  für die niederen, so daß für eine Meßreihe Pulvergewichte zwischen  $0,2$  und  $2 \text{ g}$  ausreichend waren. Kleinere Filter sind noch möglich, so daß in der skizzierten Anordnung auch sehr kostbare Elemente und separierte Isotope in der Form von Pulvern oder als Flüssigkeit verwendet werden können.

<sup>8</sup> H. MAIER-LEIBNITZ u. T. SPRINGER, Ann. Rev. Nuclear Sci. 16, 207 [1966].

<sup>9</sup> Der FRM ist ein leichtwasser-modifizierter Reaktor mit einer thermischen Leistung von 4 MW.

Für die Messung einer Streukurve muß die Flüssigkeit mehrfach gewechselt werden. Dabei darf sich die Struktur der Pulversäule nicht ändern, da die Streurate des Filters noch von der linearen Pulverdichte  $\mu$  abhängt. Außerdem ist es entscheidend wichtig, daß bei der Flüssigkeitsfüllung keine Gasreste im Pulverraum bleiben und daß bei der Trocknung die Flüssigkeit vollständig und ohne festen Rückstand entfernt wird. Dies ließ sich durch Verwendung sehr reiner Flüssigkeiten und durch Trocknung und Füllung des Filters im Vakuum erreichen.

#### 4. Messungen

Die für die Messung benötigten Flüssigkeiten mit verschiedener Streulängendichte  $(Na)_F$  wurden durch Mischen von zwei Komponenten (*A* und *B*) hergestellt. Ist  $C_A$  der Volumenbruch der Komponente *A*, dann gilt für das Gemisch

$$(Na)_F = C_A (Na)_A + (1 - C_A) (Na)_B.$$

Die hier interessierenden physikalischen Eigenschaften der benutzten Flüssigkeiten sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Tab. 1. Flüssigkeiten für Christiansen-Filter. Werte für eine Temperatur von 20 °C.

Substanz	D-Gehalt (Mol-%)	Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	$Na$ (10 <sup>9</sup> cm <sup>-2</sup> )
C <sub>2</sub> Cl <sub>4</sub>	—	1,62251	30,414 ± 0,003
C <sub>8</sub> H <sub>10</sub>	—	0,86131	7,712 ± 0,004
D <sub>2</sub> O	99,75	1,10518	+63,399 ± 0,005
H <sub>2</sub> O	—	0,998203	-5,602 ± 0,012
C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	99	0,94738	53,81 ± 0,02
C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	—	0,8787	11,82 ± 0,02

Die angegebenen  $(Na)$ -Werte wurden entweder direkt an der Flüssigkeit im Neutronen-Schwerkraft-Refraktometer gemessen oder aus neueren Werten für die Streulängen der Elemente<sup>10</sup> berechnet. Alle verwendeten Flüssigkeiten ließen sich durch Verdampfen im Vakuum ohne Zersetzung und ohne festen Rückstand vollständig entfernen.

In den meisten Fällen konnten Mischungen von Perchloräthylen (C<sub>2</sub>Cl<sub>4</sub>) und p-Xylol (C<sub>8</sub>H<sub>10</sub>) verwendet werden ( $Na$  von  $7 \cdot 10^9$  bis  $30 \cdot 10^9$  cm<sup>-2</sup>). Sie haben den Vorteil, daß sie chemisch inaktiv sind und fast alle Substanzen vollständig benetzen. Für höhere Streulängendichten ( $30 \cdot 10^9 \dots 63 \cdot 10^9$  cm<sup>-2</sup>) wurden Mischungen von leichtem mit schwerem Wasser hergestellt. Wenn die Benetzung des Pulvers durch Wasser nicht gut genug war oder wenn eine Oxidation des Pulvers zu befürchten war, haben wir Gemische von normalem und deuteriertem Benzol eingesetzt, die gut benetzen, stabil und inaktiv sind. Die in der Tabelle angegebenen Dichten wurden pyknometrisch gemessen.

Für die Experimente haben wir Elemente ausgewählt, von denen stabile Pulver in hoher Reinheit erhältlich waren (Tab. 2). Da nachträgliche Verunreinigungen, oftmals auch die Oxidation und Gasabsorption hauptsächlich an der Oberfläche der Pulverkörner auftreten, sollte grobkörniges Pulver verwendet werden. Das erfordert dicke Filter, die wegen der Neutronenabsorption in der Flüssigkeit und im Pulver größere Neutronenverluste ergeben. Wegen dieser Begrenzung läßt sich mit groben Körnern nur eine geringe lineare Pulverdichte  $\mu$  und damit nach Gl. (7) nur eine kleinere Steilheit der Streukurve erreichen. Als brauchbar erwiesen sich Korngrößen um  $2R \cong 0,1$  mm, mit denen sich ausreichend steile Meßkurven bei guter Reinheit der Substanz erreichen ließen. In einigen Fällen waren nur geringere Korngrößen erhältlich.

Wegen der möglichen Verunreinigung und vor allem wegen der Oxidation an der Oberfläche haben wir alle Pulver vor und nach dem Einsatz im Christiansen-Filter aktivierungsanalytisch untersuchen lassen. Die hauptsächlichste Verunreinigung war Sauerstoff, der durch die Reaktion  $O^{16}(n,p)N^{16}$  entweder mit Reaktorneutronen oder mit 14 MeV-Neutronen nachgewiesen wurde<sup>11</sup>. Ergebnisse sind in Spalte 7, Tab. 2, zu finden.

Die Dichte der Pulver wurde pyknometrisch durch Vergleich mit der Dichte von C<sub>2</sub>Cl<sub>4</sub> bestimmt. Ähnlich wie bei der Füllung der Christiansen-Filter haben wir die Pyknometer mit den Pulvern im Vakuum mit der Flüssigkeit gefüllt, nach der Wägung durch Verdampfen im Vakuum getrocknet und das trockene Pulver wieder gewogen. Die Meßwerte in Spalte 3 der Tab. 2 stimmen gut mit den bekannten Werten für kristalline Proben überein. (Ausnahmen bilden Niob und Tellur, deren Pulverdichten hier kleiner sind als für festes Material.)

Um die Größe der Kleinwinkelstreuung eines Christiansen-Filters in der Anordnung nach Abb. 1 zu bestimmen, waren jeweils zwei Messungen erforderlich:

1. Ermittlung der gesamten Neutronenintensität  $I_0$  des durchgegangenen Strahls durch Messen der Zählrate ohne Strahlenfänger und
2. mit Strahlenfänger Messung der Intensität  $I_s$ , die durch das Filter am Strahlenfänger vorbei gestreut wird.

Das Verhältnis  $I_s/I_0$  der gestreuten zur gesamten Intensität ist ein Maß für den Streuanteil  $p$  der Kleinwinkelstreuung.

Bei Strahlprofilen in der Form von Gauß-Kurven kann der Zusammengang zwischen diesem Streuanteil  $p$  und der Halbwertsbreite  $\beta$  des gestreuten Strahls für Strahlenfänger gegebener Breite  $c$  mit Hilfe der Fehlerfunktion  $\varphi(\beta/c)$  berechnet werden.

Mit einem Suchspalt von 0,2 mm Breite an Stelle des Strahlenfängers haben wir außerdem für eine Reihe von Filtern die Halbwertsbreite des Neutronenstrahls gemessen und in Abb. 2 als Streubreite  $\beta$  gegen den ebenfalls gemessenen Streuanteil  $p$  dargestellt. Die eingezeichneten Linien wurden mit der Fehlerfunk-

<sup>10</sup> L. KOESTER, W. NISTLER u. N. NÜCKER, wird veröffentlicht [1971].

<sup>11</sup> P. SCHRAMMEL, Kerntechnik **12**, 373 [1970].



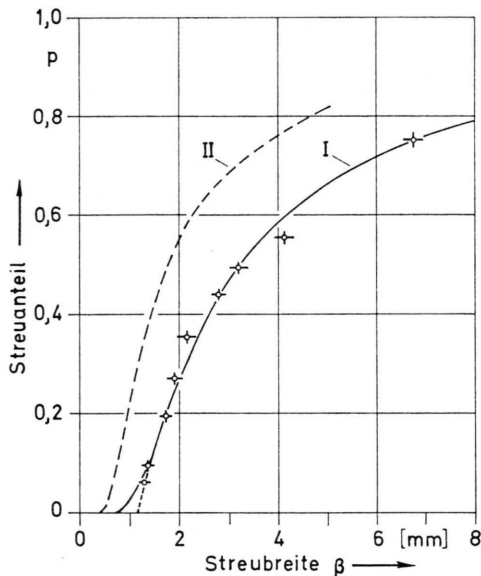


Abb. 2. Zusammenhang zwischen der Halbwertsbreite  $\beta$  des gestreuten Strahls und dem integralen Streuteil  $p$ . Die Linien sind an die Meßwerte angepaßte berechnete Kurven für die Anordnungen I:  $c=2,0$  mm und II:  $c=1,1$  mm.

tion für die beiden Blendenanordnungen I und II berechnet und den Meßwerten für Anordnung I angepaßt. Eine Streubreite von 1 mm entspricht einem mittleren Streuwinkel von  $\frac{1}{2} \omega \cong 2,6 \cdot 10^{-4}$  radian.

## 5. Meßergebnisse zur Kleinwinkelstreuung

Die Messungen des Streuteils  $p$  eines Christiansen-Filters in Abhängigkeit vom Unterschied in der Streulängendichte  $\Delta N a$  von Pulver und Flüssigkeit dienen in erster Linie der Bestimmung der Streulänge des Pulvermaterials. Sie lassen sich – wie oben erwähnt – über die in Abb. 2 dargestellte Beziehung  $p(\beta)$  auch zur Bestimmung des Formfaktors  $B$  des Streugesetzes

$$p(\Delta N a) \cong \omega(\varrho) = \omega_1 \cdot 0,67 B |\varrho \sqrt{\mu/2}| \quad (7')$$

auswerten.

Da  $\omega_1$  nach (3) proportional  $1/2 R$  und  $\varrho$  nach (2) proportional  $2 R$  ist, wird

$$\frac{1}{2R} \frac{\omega}{\omega_1} = 0,67 B \frac{1}{2R} |\varrho \sqrt{\mu/2}| \quad (8)$$

auf beiden Seiten unabhängig vom Teilchendurchmesser.

Wir haben aus den gemessenen Streukurven  $p(\Delta N a)$  folgender Filter

Chrom:  $2 \bar{R} \cong 3 \cdot 10^{-2}$  cm;  $\mu = 18 \pm 2$ ,  
 Antimon:  $2 \bar{R} \cong 0,7 \cdot 10^{-2}$  cm;  $\mu = 50 \pm 5$ ,  
 Aluminium:  $2 \bar{R} \cong 0,8 \cdot 10^{-2}$  cm;  $\mu = 44 \pm 4$ .

über die Kurve in Abb. 2 Werte für die Streubreite  $\beta(\Delta N a)$  und damit nach (1) für

$$\omega = (\omega_0^2 - (\beta/l)^2)^{1/2} \quad (l = 1,945 \text{ m})$$

erhalten. Diese Werte  $\omega$ , nach Gl. (8) normiert, sind in Abb. 3 dargestellt. Sie liegen auf einer Geraden und bestätigen damit den linearen Zusammenhang zwischen der Streubreite und dem Unterschied

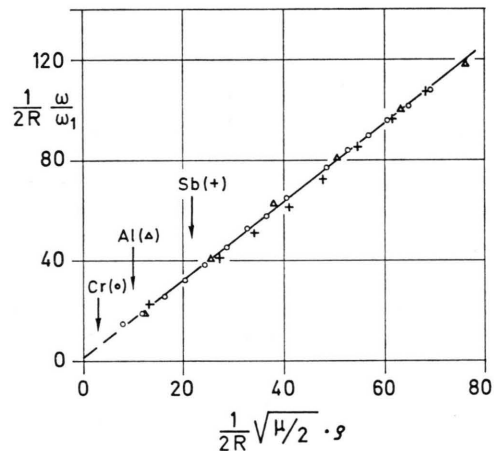


Abb. 3. Streugesetz  $\omega \sim B \cdot \varrho$  für Kleinwinkelstreuung. Die Steigung der dargestellten Kurven gibt die Konstante  $0,67 B$ . Die Werte für  $\varrho=3$  für die verschiedenen Filter sind durch Pfeile gekennzeichnet. Einheit des Ordinaten-Maßstabs:  $(0,1 \text{ mm})^{-1}$ .

$\Delta N a$  in der Streulängendichte. Die Werte, bei denen die Phasenverschiebung  $\varrho$  für ein Pulverkorn  $\varrho > 3$  wird, sind in der Abbildung durch Pfeile für jede Pulversorte markiert. Sie zeigen an, daß alle Meßpunkte im Brechungsbereich mit  $\varrho > 1$  liegen. Aus der Steigung der Geraden folgt für den Formfaktor:  $B = 2,4 \pm 0,5$ . Berechnete Werte nach (6) für  $\varrho > 10$  ( $\Delta N a = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ,  $\lambda = 13,5 \text{ \AA}$ ) sind:

für Kugeln

$$B_a = 3,6 \text{ (Vineyard)}, \\ B_b = 3,7 \text{ (von Nardroff)},$$

und für ebene Berandung

$$B_c = 2,7 \text{ (Weiß)}.$$

Unser Ergebnis bestätigt die allgemeine Theorie und ist in Übereinstimmung mit der Berechnung von Weiss. Man kann daraus schließen, daß die Reflexion der Neutronen an den Grenzflächen zwi-

schen Pulver und Flüssigkeit praktisch nicht behindert ist. Daraus folgt dann auch, daß die Oberflächen der Körner nicht so gestört sein können, daß das Reflexionsvermögen verkleinert wird.

## 6. Streulängen

Die Messungen zur Bestimmung der Streulängewerte von Pulvern wurden in den beiden Blendenanordnungen mit größerer Strahldivergenz (I) und mit kleiner Divergenz (II) ausgeführt. Abb. 4 zeigt

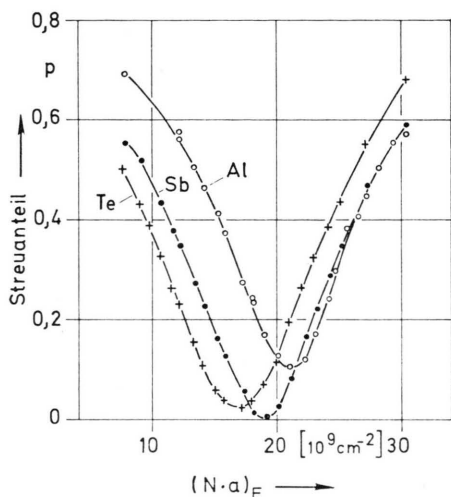


Abb. 4. Streukurven von Christiansen-Filtern für Aluminium-, Antimon- und Tellurpulver, gemessen in der Blendenanordnung I mit  $c=2,0$  mm. Die Dicke der Meßpunkte entspricht etwa dem statistischen Fehler.

Streukurven, die in der Anordnung I gemessen worden sind. Unterhalb  $p=0,5$  sind die Flanken der Kurven nahezu linear. Die Verwendung des besser kollimierten Strahls führte zu der erwarteten Verdoppelung der Steilheit der Flanken, was in Abb. 5 am Beispiel von Chrom ( $\mu=18$ ) und Antimon ( $\mu=50$ ) dargestellt ist.

Für einige Filter bleibt im Minimum der Streukurve eine Reststreuung mit  $p \cong 0,1$  (Al, Nb, Ta), die erklärt werden kann, wenn der als Verunreinigung nachgewiesene Sauerstoff nicht homogen über das Kornvolumen verteilt ist. Beim Aluminium würde eine Sauerstoff-enthaltende Oberfläche von  $0,5 \mu\text{m}$  Dicke der Zusammensetzung 12 Gew.-Proz.  $\text{Al}_2\text{O}_3 + 88$  Gew.-Proz. Al genügen, um die beobachtete Reststreuung zu erklären.

Bei kleiner Reststreuung, wie in den vorliegenden Fällen, liegt das Minimum der Streukurve beim

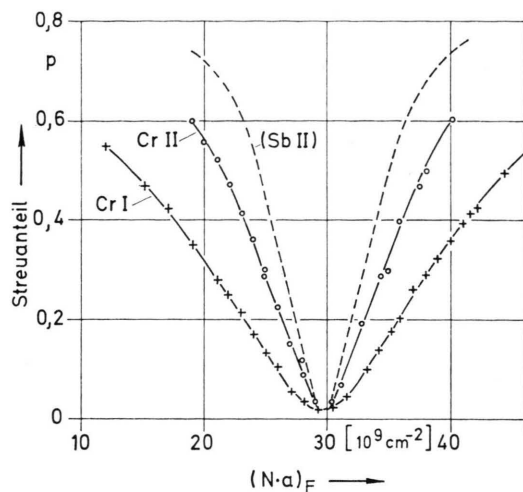


Abb. 5. Streukurven von Chrompulver, gemessen in den Blendenanordnungen I ( $c=2,0$  mm) und II ( $c=1,1$  mm). Zum Vergleich ist die Streukurve von Antimonpulver (verschoben in das Minimum der Cr-Kurve) eingezeichnet, wie sie in Anordnung II ( $c=1,1$  mm) gemessen wurde. Die entsprechende Kurve für Antimon in Anordnung I würde mit der Streukurve Cr II zusammenfallen.

Mittelwert  $(\bar{N}a)$  über das ganze Pulverkorn, der mit dem Wert für eine homogene Mischung übereinstimmt.

Der relativ hohe Sauerstoffgehalt im Tellurpulver ( $\cong 1$  Gew.-Proz.) muß homogen im Pulverkorn verteilt sein, da nur eine geringe Reststreuung ( $p_0 \cong 0,025$ ) beobachtet wurde. Sie läßt auf eine nur geringfügig größere Sauerstoffkonzentration an der Oberfläche schließen.

Die Lage des Minimums einer Streukurve wurde durch Auswertung korrespondierender Punkte auf beiden Flanken gefunden. Die in Tab. 2 (Spalte 4) angegebenen Fehler für den errechneten Mittelwert  $\langle Na \rangle$  sind Standard-Abweichungen. Sie enthalten die Unsicherheit im Streulängenwert der verwendeten Flüssigkeiten. Die Tabelle gibt weiter in Spalte 6 als Meßergebnis die mittlere Streulänge des Pulvers, in Spalte 7 die hauptsächlichen Verunreinigungen und in Spalte 8 die Korrektur für alle bekannten Verunreinigungen. Die Korrekturwerte liegen zwischen  $-0,1\%$  für Aluminiumpulver und  $-2,5\%$  für Tellurpulver. Das Endergebnis (Spalte 8) ist die Streulänge  $a_{\text{coh}}$  für das gebundene Atom, gemessen mit langsamen Neutronen der mittleren Wellenlänge  $13,5 \text{ \AA}$  (Neutronenenergie  $4,5 \cdot 10^{-4} \text{ eV}$ ).

Im einzelnen ist zu den Ergebnissen in Tab. 2 zu berichten:

Tab. 2. Ergebnisse. Die Angaben in Spalte 5 bedeuten: für die Meßanordnung I:  $c=2,0$  mm; II:  $c=1,1$  mm; für die verwendeten Flüssigkeiten: a:  $C_2Cl_4$  + p-Xylol, b:  $H_2O + D_2O$ , c:  $C_6H_6 + C_6D_6$ . Die Unsicherheiten der Korrekturen in Spalte 8 liegen bei  $\pm 10\%$ . Spalte 10 gibt Beispiele von Literaturwerten.

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Element Ausgangs- Reinheit	Korn (10 <sup>-6</sup> m) Filterdicke (mm)	Pyknometrische Dichte (20 °C) g/cm <sup>3</sup>	Na [10 <sup>9</sup> cm <sup>-2</sup> ] 20 °C	Verfahren	Streulänge Pulver $a$ (F)	Hauptsächliche Verunreinigung Gew.-Proz.	Korrektur $\Delta a$ (F)	Streulänge des Elementes $a$ (F)	Literaturwerte
<sup>13</sup> Al 99,999%	50 ... 150 (3,1)	2,698 ± 0,003	20,88 ± 0,07 20,96 ± 0,05	I a II a	3,475 ± 0,008	0,4 O <sub>2</sub>	-0,026	3,449 ± 0,009	3,442 ± 0,002 3,5 ± 0,2
<sup>14</sup> Si ≥ 99,7%	75 ... 90 (2)	2,336 ± 0,003	20,98 ± 0,03 20,95 ± 0,03	I a II a	4,186 ± 0,007	0,5 O <sub>2</sub> (0,13 W/C)	-0,028	4,158 ± 0,009	4,1594 ± 0,0022
99,999%	100 ... 150 (2) (3)	2,329 ± 0,002	20,82 ± 0,02	II a	4,169 ± 0,006	0,15 O <sub>2</sub>	-0,009	4,160 ± 0,007	
<sup>24</sup> Cr 99,99%	200 ... 300 (3,3)	7,032 ± 0,005	29,51 ± 0,07 29,77 ± 0,04	I a, b II b	3,623 ± 0,010 3,655 ± 0,005	0,64 O <sub>2</sub> 0,77 O <sub>2</sub>	-0,097 -0,118	3,532 ± 0,010	3,52 ± 0,04 3,7 ± 0,1
<sup>41</sup> Nb 99,33%	≤ 50 (1)	8,443 ± 0,020	39,83 ± 0,03	I a, b	7,277 ± 0,018	0,54 O <sub>2</sub> 0,13 W	-0,167	7,11 ± 0,04	6,9 ± 0,2
<sup>51</sup> Sb 99,995%	1 ... 100 (2,1)	6,670 ± 0,010	18,64 ± 0,03 18,68 ± 0,05	I a II a	5,653 ± 0,012	0,03 O <sub>2</sub>	-0,012	5,641 ± 0,013	5,4 ± 0,1 5,6 ± 0,3
<sup>52</sup> Te 99,997%	≤ 1 (1)	6,125 ± 0,010	16,93 ± 0,03	I a	5,856 ± 0,012	1,04 O <sub>2</sub>	-0,425	5,43 ± 0,04	5,6 ± 0,2
<sup>73</sup> Ta 99,67%	2 ... 10 (1)	16,45 ± 0,13	38,29 ± 0,08	I a, c	6,99 ± 0,06	0,15 O <sub>2</sub>	-0,08	6,91 ± 0,07	7,0 ± 0,3

## Aluminium

Die Messungen wurden an einem Pulver mit der Ausgangsreinheit 99,999% ausgeführt. Die Pulverkörner, mittlerer Durchmesser 70  $\mu$ , hatten glatte, runde Formen.

Unser Ergebnis  $a_{coh} = (3,449 \pm 0,009)F$  ist in Übereinstimmung mit früheren Messungen nach der Bragg-Methode von SHULL<sup>12</sup>  $a_{coh} = (3,5 \pm 0,2)F$  und vor allem mit genauen Bestimmungen aus dem freien Wirkungsquerschnitt (unter Berücksichtigung der Neutron-Elektron-Streulänge  $a_{ne} = -1,47 \cdot 10^{-3}$ ) nach Messungen von TRIFTSHÄUSER<sup>13</sup>:

$$a_{coh} = (3,442 \pm 0,002)F$$

und nach RAYBURN und WOLLAN<sup>14</sup>:

$$a_{coh} = (3,471 \pm 0,025)F.$$

## Silicium

Mit Hilfe der Pendellösung für die Bragg-Reflexion von Neutronen an perfekten Einkristallen hat SHULL<sup>15</sup> einen sehr genauen Wert für die kohärente Streulänge des Si-Atomkerns bestimmt. Mit dem obigen Wert für die Neutron-Elektron-Streulänge folgt aus den Meßwerten die Streulänge für das Si-Atom:

$$a_{coh} = (4,1594 \pm 0,0022)F.$$

Außerdem liegen Präzisionsmessungen von DILG und VONACH<sup>16</sup> für den freien Wirkungsquerschnitt von Si vor, aus denen die Streulänge des Atoms unter Berücksichtigung der Streuung an den Elektronen ( $a_{ne}$ ) und des inkohärenten Streuquerschnitts ( $\sigma_{inc}$ ) berechnet werden kann. Dies ergab

$$\text{für } \sigma_{inc} = 0 \quad : \quad a_{coh} = (4,159 \pm 0,003)F$$

und

$$\text{für } \sigma_{inc} = 15 \text{ mb}^{17} \quad : \quad a_{coh} = (4,144 \pm 0,003)F.$$

Dank der hohen Genauigkeit aller Werte ist Silicium für eine Prüfung unserer Meßmethode hervorragend geeignet. Wir haben zu diesem Zweck Meßreihen an einem handelsüblichen Pulver, dessen Zusammen-

<sup>12</sup> C. G. SHULL u. E. O. WOLLAN, Phys. Rev. **81**, 527 [1951].

<sup>13</sup> W. TRIFTSHÄUSER, Z. Phys. **186**, 23 [1965].

<sup>14</sup> L. A. RAYBURN u. E. O. WOLLAN, Nuclear Phys. **61**, 381 [1965].

<sup>15</sup> C. G. SHULL, Phys. Rev. Lett. **21**, 1585 [1968].

<sup>16</sup> W. DILG u. H. VONACH, Z. Naturforsch. **26 a**, 442 [1971].

<sup>17</sup> J. P. NIKLAUS et al., Z. Phys. **190**, 295 [1966]. — R. SIMSON, Diplomarbeit, Physik-Department der TH München 1965.

setzung analysiert wurde (0,03% Al; 0,02% Ca; 0,01% Cu; 0,50% O<sub>2</sub> und 0,14% WC-Pulver) und an einem extrem reinen Pulver (99,85% Si; 0,15% O<sub>2</sub>) durchgeführt. Die gemessenen Streukurven sind in Abb. 6 dargestellt. Im Minimum der Kurve, die mit dem weniger reinen Pulver aufgenommen wurde, verbleibt eine Reststreuung, die auf eine Verunreinigung mit Wolfram-Carbid-Pulver zurückzuführen ist.

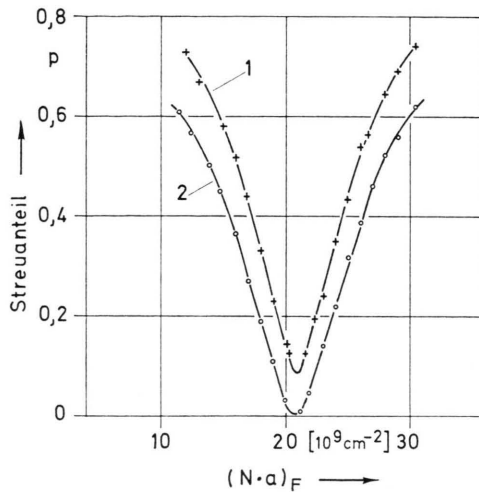


Abb. 6. Streukurven für verschiedene Siliciumpulver, gemessen mit geringer Strahldivergenz (Anordnung II). Kurve 1: Pulver,  $2R \cong 80 \mu$ , Reinheit 99,39%, Filter 2 mm. Kurve 2: Pulver,  $2R \cong 120 \mu$ , Reinheit 99,85%, Filter 3 mm.

Die Lage des Minimums wird dadurch nicht merklich beeinflusst.

Beide Meßreihen führten zu übereinstimmenden Werten für die kohärente Streulänge des Atoms, deren Mittelwert

$$a_{\text{coh}} = (4,159 \pm 0,006) F$$

zahlenmäßig gleich ist dem Wert von Shull und der Auswertung der Transmissionsmessungen mit  $\sigma_{\text{inc}} = 0$ .

### Chrom

Polykristallines Chrompulver (99,99% Reinheit) wurde in den beiden verschiedenen Blendenanordnungen und mit verschieden stark oxidiertem Pulver gemessen (Abb. 5). Die beiden Meßergebnisse  $a_{\text{coh}} = (3,526 \pm 0,012) F$  und  $a_{\text{coh}} = 3,537 \pm 0,010 F$  stimmen im Rahmen des Fehlers überein. Der Mittelwert

$$a_{\text{coh}} = (3,532 \pm 0,010) F$$

ist vereinbar mit den bekannten Werten

$$a_{\text{coh}} = (3,7 \pm 0,2) F^{12},$$

$$a_{\text{coh}} = (3,52 \pm 0,04) F \text{ aus } \sigma_{\text{coh}} = (1,56 \pm 0,03) b^{18}.$$

### Niob, Antimon, Tellur und Tantal

Für diese Elemente sind nur Werte mit Fehlern um  $\pm 3\%$  bekannt, die mit der Bragg-Methode von SHULL und WOLLAN<sup>12</sup> (Nb, Sb, Ta) und mit Hilfe der Totalreflexion an aufgedampften Schichten<sup>19</sup> (Tellur) gemessen worden sind.

Bei unseren Untersuchungen konnte eine Benetzung von Tantalpulver mit Wasser nicht erreicht werden. Wir haben diese Messung deshalb mit Mischungen von leichtem und schwerem Benzol durchgeführt.

Die Ergebnisse unserer Bestimmung besitzen Unsicherheiten innerhalb  $\pm 0,2\%$  bis  $\pm 1\%$ .

Die Meßwerte liegen im Rahmen der bekannten Daten (in Klammern):

$$\text{Nb: } a_{\text{coh}} = 7,11 \pm 0,04 F (6,9 \pm 0,2 F),$$

$$\text{Sb: } a_{\text{coh}} = 5,641 \pm 0,012 F (5,4 \pm 0,2 F),$$

$$\text{Te: } a_{\text{coh}} = 5,43 \pm 0,04 F (5,6 \pm 0,2 F),$$

$$\text{Ta: } a_{\text{coh}} = 6,91 \pm 0,07 F (7,0 \pm 0,3 F).$$

Die Streulänge von Antimon hat außerdem WEISS<sup>4</sup> aus der Strahlverbreiterung durch Sb-Pulver zu  $a_{\text{coh}} = (5,6 \pm 0,3) F$  berechnet.

## 7. Diskussion

Die mit der beschriebenen Methode gemessenen Streulängen bedürfen — neben den angegebenen Korrekturen auf Verunreinigung — keinerlei prinzipieller Korrekturen. Auch meßtechnisch traten keine Komplikationen durch Bragg-Streuung am polykristallinen Pulver auf, weil die verwendete Wellenlänge (13,5 Å) in allen Fällen größer war als die Grenzwellenlänge ( $2d_{\text{max}}$ ) für Bragg-Streuung. Auch der Formfaktor der Elektronenhülle ist unter diesen Bedingungen gleich eins. Prinzipiell ist somit für die Streulängenwerte eine hohe Genauigkeit möglich.

Begrenzungen der Genauigkeit werden durch Verunreinigungen des Pulvermaterials, durch Unsicherheiten bei der Dichtemessung und durch Störungen in der insgesamt sehr großen Grenzfläche zwischen Pulver und Flüssigkeit verursacht. Unsere Untersuchung hat hierzu gezeigt, daß es mit verhältnis-

<sup>18</sup> BNL 325 [1958].

<sup>19</sup> C. J. HEINDL et al., Rev. Sci. Instrum. **27**, 620 [1956].



mäßig einfachen Mitteln möglich ist, für eine große Anzahl von Elementen in fester Form die kohärenten Streulängen mit einer Unsicherheit zwischen  $\pm 0,2\%$  und  $1\%$  zu bestimmen, die in vielen Fällen etwa fünfmal geringer ist als die Unsicherheit der normalen Bragg-Methode.

Wir danken Herrn Professor HEINZ MAIER-LEIBNITZ für wichtige Ratschläge und Diskussionen. Herr Dr. HENKELMANN und Herr P. SCHRAMMEL von der Gesell-

schaft für Strahlenforschung mbH., München-Neuherberg, wo die meisten Sauerstoffanalysen durchgeführt worden sind, haben durch Analysen einen wesentlichen Beitrag zu den Ergebnissen geleistet. Herrn H. BERN-EISER sagen wir Dank für Präzisionsarbeit bei der Herstellung des Blendensystems und Herrn M. BEER für vorbereitende Experimente. Herrn Dr. BRAUN, Consortium für Elektrochemie, München, sind wir für Analysen und für das hochgereinigte Siliciumpulver zu Dank verpflichtet. Der Betriebsmannschaft des FRM danken wir für stete Hilfsbereitschaft.