

# Messung der kohärenten Streuamplitude für die Neutron-Deuteron-Wechselwirkung am Neutronenschwerkraftrefraktometer des FRM\*

Wolfgang Nistler

Physik-Department der Technischen Universität München

(Z. Naturforsch. **29a**, 1284–1290 [1974]; eingegangen am 28. Juni 1974)

*Measurement of the n-d Coherent Scattering Amplitude Using the Neutron Gravity Refractometer at the Research Reactor of the Technical University of Munich*

Measurements of the coherent scattering amplitudes of various mixtures of heavy and light water are reported. By means of mirror reflection technique the coherent scattering amplitudes of the  $D_2O$  and  $H_2O$  molecule are determined to be  $19.148 \pm 0.004$  F and  $-1.679 \pm 0.004$  F, respectively. Use of  $a_H = -3.740 \pm 0.003$  F, obtained by the same technique, yields  $a_D = 6.674 \pm 0.006$  F as the bound scattering amplitude of the deuterium nucleus. This value disagrees with the widely accepted  $6.21 \pm 0.04$  F, reported by Bartolini et al. in 1968.

## Einführung

Die Wechselwirkung von Neutronen und Deuteronen kann im Bereich kleiner Energie vollständig durch die zwei verschiedenen Streuprozesse beschrieben werden, bei denen die Spinrichtungen beider Teilchen parallel (Streuamplitude  $a_4$ ) oder antiparallel (Streuamplitude  $a_2$ ) stehen. Die durch  $a_4$  beschriebene Streuung ist unempfindlich gegen Art und Form des Wechselwirkungspotentials zwischen den beiden Teilchen. Bei antiparalleler Einstellung ist ein Bindungszustand der Teilchen möglich. Der entsprechende Streuzustand wird stark von der Wechselwirkung bestimmt. Seine Streuamplitude  $a_2$  lässt deshalb eine quantitative Prüfung der zahlreichen theoretischen Ansätze für die Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung zu<sup>1</sup>.

Einer direkten Messung sind  $a_2$  und  $a_4$  nur sehr schwer zugänglich. Dagegen sind die verschiedenen Kombinationen von  $a_2$  und  $a_4$  wie die kohärente Streuamplitude  $a_{coh}$ , der totale Streuquerschnitt  $\sigma_{t,frei}$  und der inkohärente Streuquerschnitt  $\sigma_{inc}$  gut messbar. An ihrer genauen Messung besteht daher großes Interesse, weil sich aus jeweils zwei von ihnen ein Wertepaar für  $a_2$  und  $a_4$  gewinnen lässt.

Zur Zeit existieren zwei Wertepaare, die in Widerspruch zueinander stehen. Das erste Paar basiert auf  $a_2/a_4 = 0.12 \pm 0.04$ <sup>2</sup> und  $\sigma_{frei} = 3.44 \pm 0.06$  b<sup>3</sup> und liefert  $a_2 = 0.7 \pm 0.3$  F und  $a_4 = 6.4 \pm 0.1$  F. Das zweite, bisher weitgehend anerkannte, stützt sich auf  $a_{coh} = 6.21 \pm 0.04$  F<sup>4</sup> und  $\sigma_{inc} = 2.25 \pm 0.04$  b<sup>5</sup>.

\* Auszug aus der von der Fakultät für Allgemeine Wissenschaften der Technischen Universität München genehmigten Dissertation.

Das Ergebnis  $a_2 = 0.15 \pm 0.05$  F und  $a_4 = 6.13 \pm 0.04$  F steht jedoch in Widerspruch zu früheren Meßresultaten<sup>2, 3, 6, 7</sup>.

Die Annahme einfacher separierbarer Potentiale für die Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung bevorzugt eindeutig das erste Wertepaar. Wählt man einen Teil der Potentialparameter so, daß die Meßwerte für Bindungsenergie und Quadrupolmoment des Deuterons sowie die (n, p)-Streuung richtig beschrieben werden, dann können mit den noch freien Parametern nicht gleichzeitig die Bindungsenergie des Tritons und  $a_2$  des zweiten Wertepaares den Meßwerten angepaßt werden. Zudem brachte eine neue Messung der kohärenten Streuamplitude von Deuterium ein mit dem zweiten Paar unvereinbares Ergebnis von  $a_{coh} = 6.70 \pm 0.05$  F<sup>8</sup>.

Um die Widersprüche zu klären, wurden neue Messungen der kohärenten Streuamplitude von Deuterium vorgenommen. Das Neutronenschwerkraftrefraktometer am FRM<sup>9, 10</sup> erlaubte mit Hilfe der Reflexionsmethode eine Absolutbestimmung der kohärenten Streuamplitude des Deuteriums. Zusammen mit einer Neubestimmung des freien Wirkungsquerschnittes von Deuterium war dann eine Entscheidung zugunsten eines der beiden Wertepaare möglich. Über das Ergebnis dieser Untersuchungen wurde bereits kurz berichtet<sup>11</sup>. Im folgenden soll die Messung der kohärenten Streuamplitude beschrieben und das endgültige Ergebnis vorgelegt werden.

Sonderdruckanforderungen an Dr. W. Nistler, Technische Universität München, Physik-Department, D-8046 Garching, Reaktorstation.



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 digitized 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.

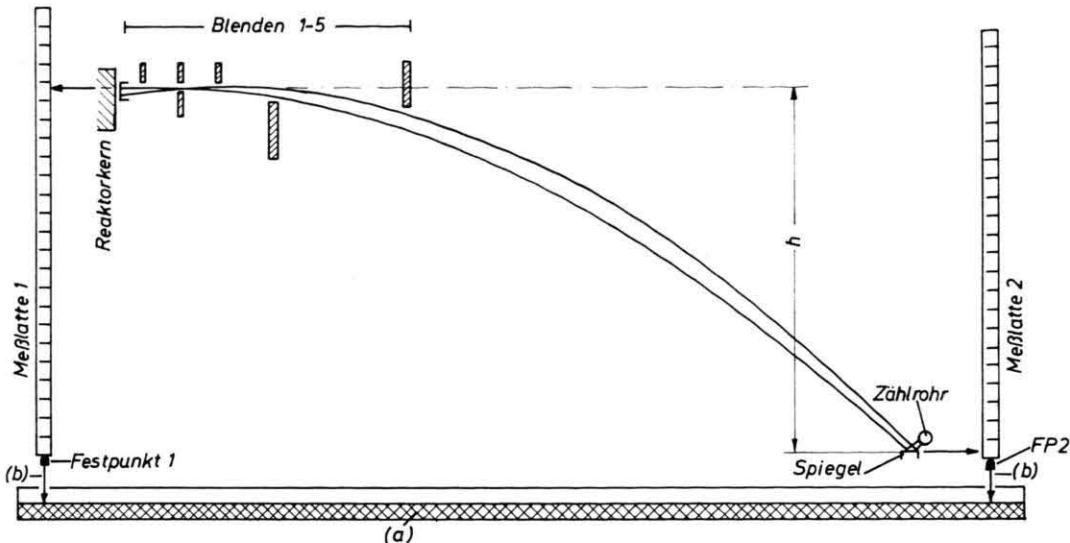


Abb. 1. Blendensystem und Strahlengang im Schwerkraftrefraktometer (nicht maßstäblich) mit Skizze der Rohrwasserwaage. Die automatischen Taster (b) registrieren die Abstände der Festpunkte von der Wasseroberfläche in der halbgefüllten Rohrleitung (a).

### Meßprinzip

Die größte Genauigkeit bei der Messung kohärenter Streuamplituden konnte bisher mit der Reflexionsmethode erreicht werden. Am Neutronenschwerkraftrefraktometer nach Maier-Leibniz<sup>9</sup> (Abb. 1) wird ein definierter Neutronenimpuls senkrecht zu einem Flüssigkeitsspiegel dadurch erzeugt, daß nahezu waagrecht aus dem Reaktor austretende Neutronen (Masse  $m_N$ ) vor ihrem Auftreffen auf den Spiegel im Schwerefeld der Erde Gravitationsenergie gewinnen. Die zum Spiegel senkrechte Komponente  $E = m_N b h$  ist durch die Fallhöhe  $h$  der Neutronen und die wirksame Beschleunigung  $b$  bestimmt.  $b$  enthält den Ortswert der Schwerebeschleunigung und fallhöhenabhängige Korrekturen<sup>12</sup>. Aus der Grenzfallhöhe  $h_0$  der Totalreflexion ergibt sich die Streuamplitude der Flüssigkeit zu

$$a_{coh} = \frac{m_N^2 b h_0}{2 \pi \hbar^2 N} \quad (N = \text{Moleküle/cm}^3).$$

$h_0$  läßt sich aus der Messung von Fallhöhen  $h > h_0$  und den zugehörigen Reflektivitäten  $R(h, h_0)$  ermitteln.  $N$  erfordert die Messung der Dichte  $\varrho$  der Spiegelsubstanz.

Absorption und inkohärente Streuung in der Spiegelsubstanz können durch Einführung einer komplexen Grenzfallhöhe  $h_0$  berücksichtigt werden<sup>13</sup>. Der Einfluß auf die Streuamplitude ist bis zu Wirkungsquerschnitten von  $10^4$  b vernachlässig-

bar klein. Die Form der Reflexionskurve  $R(h, h_0)$  wird jedoch verändert. Im Bereich um die Grenzfallhöhe führen Absorption und inkohärente Streuung zu einer Verflachung der Kurve, wie die Abb. 3–5 zeigen. Übereinstimmung der gemessenen mit der berechneten Kurve innerhalb der Meßfehler sichert die Messung gegen systematische Fehler, insbesondere gegen Kleinwinkelstreuung der einfallenden Neutronen.

### Experimentelle Anordnung

Die Meßapparatur ist von Koester<sup>10</sup> ausführlich beschrieben worden. Einige Änderungen dienten dazu, die Meßgenauigkeit der Anlage weiter zu steigern. So konnte durch eine Neuverlegung der Rohrwasserwaage ein mittlerer Fehler der gesamten über eine Distanz von ca. 100 m laufenden Höhenvermessung Hauptspalt-Spiegeloberfläche von  $\pm 0,02$  mm erreicht werden. Die maximale Anzeigegenauigkeit der Rohrwasserwaage lag zur Zeit der Messungen unter  $\pm 0,01$  mm. Abbildung 2 zeigt die relativen Höhenunterschiede zwischen zwei Festpunkten in der Reaktorhalle und im Meßhaus während der Jahre 1971–1973. Die Schwankungen sind bedingt durch jahreszeitliche Änderungen des Grundwasserspiegels im Bereich des Meßhauses, jahreszeitliche Temperaturänderungen und vor allem verschiedene Belastung des Reaktorhallenbodens. So ist die Entleerung großer Abschirmwannen während der Reaktorwartungspausen deutlich sichtbar.

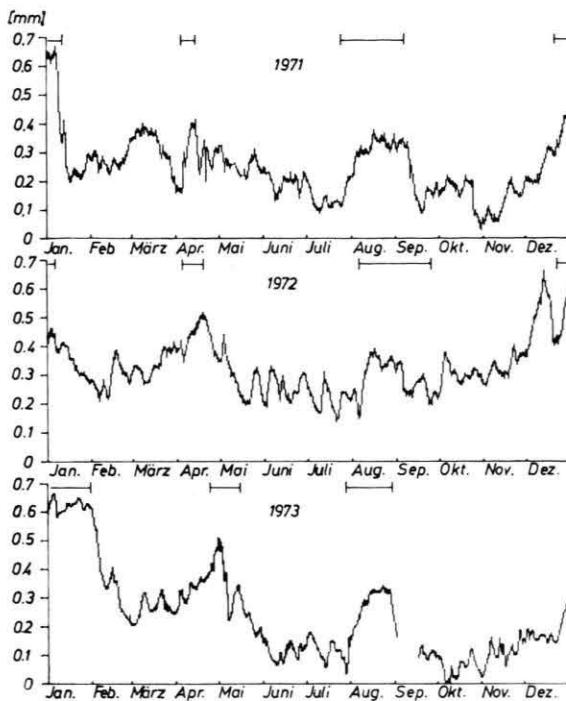


Abb. 2. Relative Höhendifferenz zwischen Reaktorhalle und Meßhaus gemessen mit der Rohrwasserwaage. Aufgetragen ist die maximale tägliche Schwankung während der Jahre 1971–1973. Reaktorwartungspausen sind durch waagrechte Balken angezeigt.

Auch die Konstanthaltung der Temperatur im Meßhaus und damit der Spiegelsubstanz wurde verbessert. Die maximale Welligkeit der Regelung betrug  $0,1 - 0,2$  °C. Zur Temperaturmessung fanden 9 gleichmäßig über die Spiegeloberfläche verteilte Thermoelemente Verwendung. Sie ragten von unten in die Flüssigkeit und waren mit einem geeichten Thermometer (Eichfehler  $\pm 0,1$  °C) kalibriert. Es traten maximale Temperaturunterschiede im Spiegel von  $0,3$  °C auf. Die mittlere Spiegeltemperatur konnte auf  $\pm 0,1$  °C genau ermittelt werden.

### Meßsubstanzen

Als deuteriumhaltige Substanzen für die Spiegel dienten Mischungen von D<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>O. Aus den Messungen an zwei Mischungen mit verschiedenem D<sub>2</sub>O-Gehalt ergaben sich die Streuamplituden von reinem D<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>O. Aus früheren Experimenten war die Streuamplitude von Wasserstoff bekannt<sup>12</sup>. Damit konnten die Streuamplituden von Deuterium und Sauerstoff errechnet werden. Um eine möglichst große Genauigkeit zu erreichen und um systematische Fehler auszuschließen, wurden sieben Mischungen mit verschiedenem Isotopenverhältnis D/H

untersucht. Die Grenzfallhöhen lagen zwischen 58,73 mm und 1608,63 mm, die Wellenlängen der Neutronen zwischen 4,4 Å und 23 Å. Die Mischungen waren so gewählt, daß die Meßpunkte im Wellenlängenbereich äquidistant lagen.

Das Ausgangsmaterial war Schwerwasser der Fa. Merck, nach Herstellerangabe mindestens 99,75% D<sub>2</sub>O. Ausgehend vom hohen D<sub>2</sub>O-Gehalt entstand jede Mischung aus der vorhergehenden, indem destilliertes H<sub>2</sub>O zugesetzt wurde. Die dabei verwendete Waage erlaubte eine Festlegung des Isotopenverhältnisses der neuen Mischung mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,01\%$ .

Bei der Herstellung und Messung der Mischungen wurde besonderer Wert auf die Vermeidung von Abreicherung des Isotopenverhältnisses durch Kontakt mit leichtem Wasser gelegt. Alle Gefäße waren vor ihrer Verwendung mehrmals mit Schwerwasser gespült und im Vakuum getrocknet. Das Umfüllen der Meßsubstanz vor der Messung aus den Vorratsgefäß in den Gasschutzkasten erfolgte unter Ausschluß von Luftfeuchtigkeit. Vorratsgefäß und Gasschutzkasten waren über Flanschverbindungen gasdicht verbunden und die Flüssigkeit gelangte unter Schutzgas (getrocknete Luft) in das Meßsystem. Das Entleeren des Schutzkastens nach der Messung geschah durch Absaugen der Flüssigkeit in die evakuierten Vorratsbehälter.

### Dichte und Isotopenverhältnis

Zur Feststellung der Isotopenverhältnisse der Mischungen boten sich mehrere Methoden an<sup>14</sup>. IR-Spektroskopie und Kernresonanzspektroskopie haben den Nachteil, nur im Bereich sehr großer D<sub>2</sub>O- bzw. H<sub>2</sub>O-Konzentration mit der hier erforderlichen Genauigkeit von ca.  $\pm 0,01\%$  zu arbeiten. Diesen Nachteil vermeidet die Konzentrationsbestimmung aus der Dichte der Meßsubstanz. Sie war hier anwendbar, da bei der Mischung von leichtem und schwerem Wasser keine Volumenkontraktion auftritt und die Dichten der reinen Komponenten um ca. 10% verschieden sind. Zudem war auch für die Berechnung der Streuamplituden der Mischungen aus den gemessenen Grenzfallhöhen ein genauer Wert der Dichte der Meßsubstanz erforderlich.

Bei der Herstellung von D<sub>2</sub>O werden überschwere Komponenten ebenfalls angereichert. Diese, in der Hauptsache D<sub>2</sub>O<sup>18</sup> (ÜS), mußten bei der geforderten Genauigkeit berücksichtigt werden. Für die Gewichtskonzentration von D<sub>2</sub>O (SW) in Abhängigkeit von den Dichten der Mischungen  $\rho_M$  und den

Tab. 1. Dichten und D<sub>2</sub>O-Konzentrationen der verwendeten Meßsubstanzen. Die angegebenen Fehler sind dreifache statistische Fehler.

	1 Dichte $\rho$ in g/cm <sup>3</sup> bei 25 °C	2 Isotopen- verhältnis O <sup>18</sup> : O <sup>16</sup>	3 Gewichts- prozente D <sub>2</sub> O aus Dichte	4 Gewichts- prozente D <sub>2</sub> O aus Einwaage	5 Mol-Prozente D <sub>2</sub> O aus Dichte
Mischung 1	1,10424 ± 0,00004	0,003863	99,67 ± 0,04	99,67 ± 0,04	99,63 ± 0,04
	1,07298 ± 0,00004	0,003270	72,67 ± 0,04	72,63 ± 0,02	70,51 ± 0,04
	1,05011 ± 0,00004	0,002885	51,89 ± 0,04	51,86 ± 0,01	49,24 ± 0,04
	1,02926 ± 0,00004	0,002516	32,16 ± 0,04	32,16 ± 0,01	29,89 ± 0,04
	1,01805 ± 0,00004	0,002315	21,20 ± 0,04	21,22 ± 0,01	19,48 ± 0,04
	1,01184 ± 0,00004	0,002205	15,05 ± 0,04	15,02 ± 0,01	13,74 ± 0,04
	1,00933 ± 0,00004	0,002159	12,52 ± 0,04	12,50 ± 0,01	11,40 ± 0,04

Dichten der reinen Komponenten  $\rho_{\text{LW}}$ ,  $\rho_{\text{SW}}$  und  $\rho_{\text{CS}}$  ergab sich:

$$c = \frac{\rho_{\text{SW}}(\rho_{\text{M}} - \rho_{\text{LW}})}{\rho_{\text{M}}(\rho_{\text{SW}} - \rho_{\text{LW}})} - c_{\text{CS}} \frac{\rho_{\text{LW}}(\rho_{\text{CS}} - \rho_{\text{SW}})}{\rho_{\text{CS}}(\rho_{\text{SW}} - \rho_{\text{LW}})}.$$

Werte der Dichte von H<sub>2</sub>O und D<sub>2</sub>O (mit natürlichem Isotopenverhältnis O<sup>16</sup>/O<sup>18</sup>) sowie D<sub>2</sub>O<sup>18</sup> fanden sich bei Kell<sup>15</sup>. Danach war bei 25,0 °C:

$$\rho_{\text{LW}} = 0,99705 \text{ g/cm}^3; \quad \rho_{\text{SW}} = 1,10445 \text{ g/cm}^3; \\ \rho_{\text{CS}} = 1,21521 \text{ g/cm}^3.$$

Für  $c_{\text{CS}}$  war dann die Überschußkonzentration an schwerem Sauerstoff O<sup>18</sup> einzusetzen. Sie wurde am Institut für Geochemie der TU München \* nach der CO<sub>2</sub>-Austauschmethode bestimmt.

Die Dichte der Mischungen wurde pyknometrisch gemessen. Das Pyknometer aus Quarzglas hatte ein Volumen von ca. 10 ml. Der Durchmesser der Kapillare betrug 0,3 mm. Alle Wägungen wurden mit einer Mikrowaage (20 g Höchstlast) vorgenommen. Während der gesamten Zeit der Dichtemessung war die Temperatur im Wägeraum bis auf ± 0,2 °C konstant. Die Temperatur im Pyknometer wurde mit einem geeichten Thermometer (Eichfehler ± 0,1 °C) gemessen. Alle Prozeduren, die zum Füllen nötig waren, geschahen unter Ausschluß der Luftfeuchtigkeit in einer Atmosphäre aus getrocknetem Stickstoff. Nach beendeter Füllung wurde das Pyknometer mit einem Schliffstopfen abgeschlossen, so daß keine Verdunstung der Flüssigkeit oder Änderung des Isotopenverhältnisses auftreten konnten. Die Reproduzierbarkeit einer Füllung lag bei ± 50 µg.

Für jede D<sub>2</sub>O-Konzentration wurden Dichtebe- stimmungen bei drei Temperaturen in der Nähe von

25 °C durchgeführt. Der Wert der Dichte bei 25 °C konnte gut intrapoliert werden. Bei Berücksichtigung einer Temperaturgenauigkeit von ± 0,1 °C und Wägfehlern von ± 50 µg lag der maximale Fehler der Dichtemessung bei  $\Delta\rho/\rho = \pm 4 \cdot 10^{-5}$ .

In Tab. 1 sind die Dichten der einzelnen Mischungen und die aus ihnen berechneten Konzentrationen an D<sub>2</sub>O zusammengestellt.

Eine Probe des ungebrauchten D<sub>2</sub>O wurde außerdem bei der GSF \*\* in Neuherberg bei München mit Hilfe der Kernresonanzspektroskopie untersucht. In Übereinstimmung mit der Herstellerangabe ergab sich eine molare Konzentration an D<sub>2</sub>O von 99,74 ± 0,04%. Damit und aus den Einwaagen von leichtem und schwerem Wasser bei der Herstellung der Mischungen konnten ebenfalls die Konzentrationen der einzelnen Mischungen berechnet werden. Wie die Spalten 3 und 4 der Tab. 1 zeigen, war die Übereinstimmung mit den Werten aus der Dichtemessung sehr gut. Daraus kann gefolgt werden, daß während der Herstellung, Fallhöhenmessung und Dichtemessung keine Abreicherung der D<sub>2</sub>O-Konzentration eintrat.

### Fallhöhen und Streuamplituden der Mischungen

Die Messung der Grenzfallhöhe einer Spiegel- substanz erfordert im Prinzip die Messung nur einer Reflektivität bei einer Fallhöhe  $h > h_0$ . Hierbei können jedoch Störungen wie Kleinwinkelstreuung der einfallenden Neutronen an den Neutronenfenstern und Oberflächenwellen auf dem Spiegel, die eine Veränderung der Reflexionskurve im Bereich um  $h_0$  bewirken, übersehen werden. Bei Variation der Fallhöhen in einem größeren Bereich um  $h_0$  sichert die Übereinstimmung der Meßpunkte mit der er-

\* Die Messungen wurden dankenswerterweise von Frau Dr. Markl ausgeführt.

\*\* Herrn Dr. Penka danke ich für die Durchführung der Messungen.

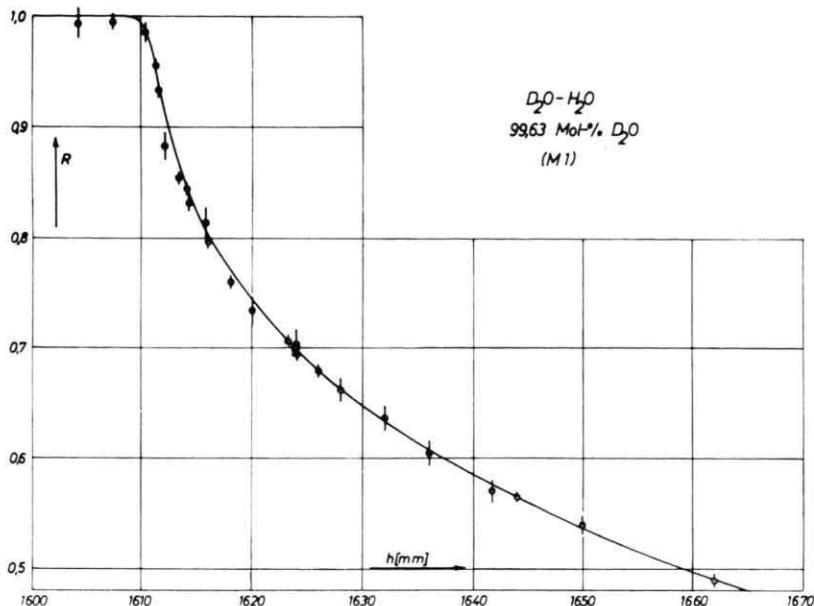


Abb. 3-5. Vergleich von berechneter Reflektivitätskurve (ausgezogen) und Meßpunkten. Die Fehler der Meßpunkte repräsentieren  $1\sigma$ -Standardabweichungen. Absorption und inkohärente Streuung bewirken eine Depression der Kurven im Bereich um die Grenzfallhöhe.

Abb. 3

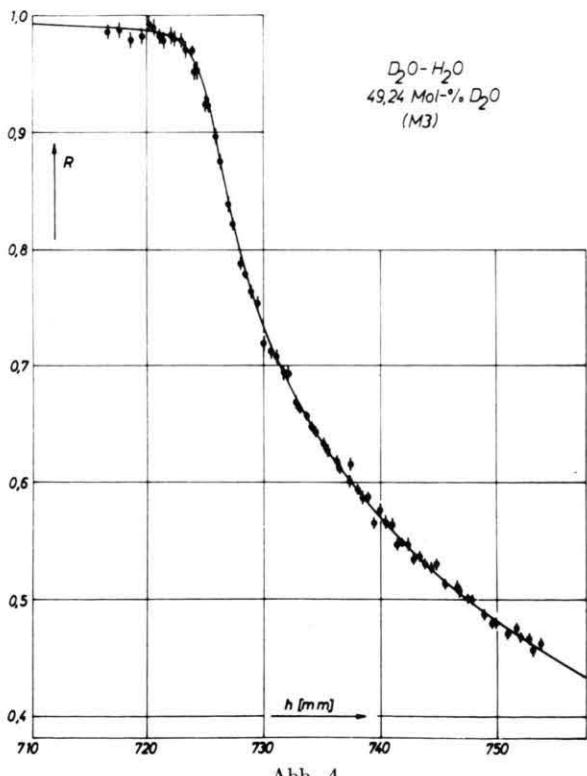


Abb. 4

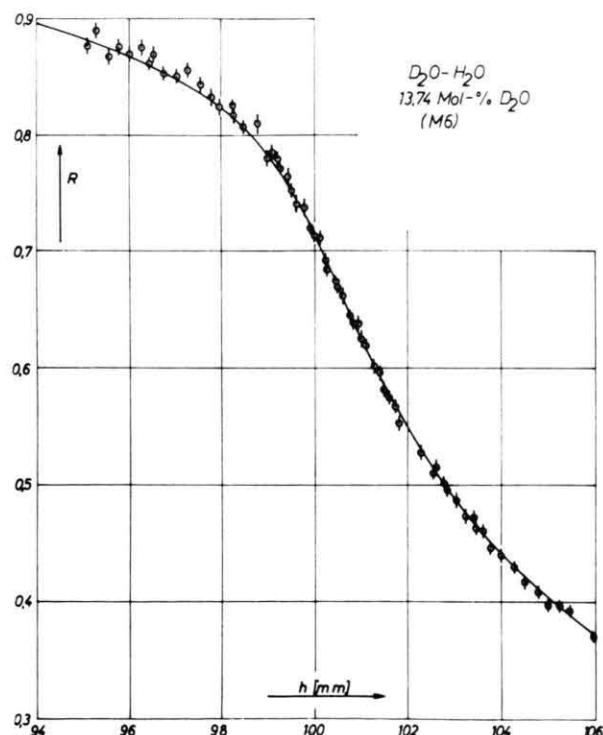


Abb. 5

rechneten ungestörten Kurve  $R(h, h_0)$  die Unge- störtheit der Messung. Die Abb. 3-5 zeigen Meß- punkte und berechnete Reflektivitätskurven für drei D<sub>2</sub>O-Konzentrationen. Die einzelnen Meßpunkte wurden mit Hilfe des aus der Dichtemessung be-

kannten therm. Ausdehnungskoeffizienten auf die mittlere Meßtemperatur 25,0 °C umgerechnet. Stö- rungen, die systematische Fehler der Grenzfall- höhenbestimmung verursachen konnten, waren bei allen Messungen nicht zu erkennen. Mit den aus den

Tab. 2. Meßergebnisse und Korrekturen zur Berechnung der Streuamplituden. Alle Höhen sind in mm angegeben, alle Fehler sind einfache statistische Fehler.

Mischung	Nr.	1	2	3	4	5	6	7
D <sub>2</sub> O (Mol-%)	99,63 ± 0,04	70,51 ± 0,04	49,24 ± 0,04	29,89 ± 0,04	19,48 ± 0,04	13,74 ± 0,04	11,40 ± 0,04	
$\sigma_a + \sigma_{\text{inc}}(b)$	22	111	158	385,66 ± 0,04	202,44 ± 0,02	99,88 ± 0,03	245	280
$h_{\text{og}}$	1610,67 ± 0,11	1099,86 ± 0,07	725,55 ± 0,04	+0,05 ± 0,02	-0,07 ± 0,02	-0,20 ± 0,04	-0,17 ± 0,02	+0,06 ± 0,01
$\Delta h_{\text{verm}}$	-0,07 ± 0,01	-0,08 ± 0,02	+0,43 ± 0,02	+0,35 ± 0,01	+0,31 ± 0,01	+0,12 ± 0,01	+0,07 ± 0,01	-0,04 ± 0,01
$\Delta h_{\text{spe}}$	+0,52 ± 0,02	-3,52 ± 0,01	-3,05 ± 0,01	-2,62 ± 0,01	-2,12 ± 0,01	-1,75 ± 0,01	-1,46 ± 0,01	-1,30 ± 0,01
$\Delta h_{\text{beschl}}$	-3,52 ± 0,01	+1,02 ± 0,01	+1,02 ± 0,01	+1,01 ± 0,01	+1,01 ± 0,01	-1,00 ± 0,01	+1,00 ± 0,01	+1,00 ± 0,01
$\Delta h_{\text{Dampf}}$	+1,03 ± 0,01	1098,18 ± 0,08	724,35 ± 0,05	384,79 ± 0,05	201,61 ± 0,05	99,32 ± 0,04	58,73 ± 0,04	
$h_{\text{ok}}$	1608,63 ± 0,12	(4,32383 ± 0,00031) · 10 <sup>-10</sup>	(2,85196 ± 0,00029) · 10 <sup>-10</sup>	(1,51502 ± 0,00020) · 10 <sup>-10</sup>	(7,9379 ± 0,00020) · 10 <sup>-10</sup>	(3,9105 ± 0,0016) · 10 <sup>-9</sup>	(2,3124 ± 0,0016) · 10 <sup>-9</sup>	
$N a$ (cm <sup>-2</sup> )	(6,33361 ± 0,00047) · 10 <sup>-10</sup>	19,010	19,437	18,622	18,412	18,296	18,249	
Molgew. $M$	20,023	(3,32114 ± 0,00120) · 10 <sup>-22</sup>	(3,32442 ± 0,00124) · 10 <sup>-22</sup>	(3,32849 ± 0,00129) · 10 <sup>-22</sup>	(3,32982 ± 0,00131) · 10 <sup>-22</sup>	(3,33046 ± 0,00132) · 10 <sup>-22</sup>	(3,33076 ± 0,00132) · 10 <sup>-22</sup>	
$N$ (cm <sup>-3</sup> )	19,0706 ± 0,0070	13,0063 ± 0,0049	8,5730 ± 0,0033	4,5517 ± 0,0020	2,3839 ± 0,0010	1,1742 ± 0,0006	0,6943 ± 0,0006	
$a_M$ (F)								

Meßpunkten berechneten Grenzfallhöhen wurde ein gewichteter Mittelwert gebildet. Das Gewicht eines Meßpunktes ergab sich aus der Steilheit der Reflexionskurve an dieser Stelle und aus dem Meßfehler der Reflektivität. An dem so erhaltenen Wert waren noch apparative Korrekturen anzubringen, die für alle Meßpunkte gleich waren. Die Vermessungskorrektur berücksichtigte die genaue Fallhöhenvermessung mit der Rohrwasserwaage, die Spektrumskorrektur die Breite und Form des Neutronenspektrums. Außerdem waren noch Korrekturen wegen der vom Ortswert abweichenden Vertikalbeschleunigung sowie wegen des Gasraumes über dem Flüssigkeitsspiegel nötig. Alle Korrekturen waren entweder sehr genau meßbar oder exakt berechenbar. In Tab. 2 sind alle Meßergebnisse zusammengestellt.

Für die Bestimmung der mittleren Streuamplitude einer Mischung wurde das mittlere Molekulargewicht mit folgenden Werten berechnet<sup>16</sup>:

$$M_{\text{LW}} = 18,016 \text{ g/mol}, \quad M_{\text{SW}} = 20,032 \text{ g/mol}.$$

Der erhöhte O<sup>18</sup>-Gehalt von D<sub>2</sub>O ist darin berücksichtigt.

### Streuamplitude von Deuterium

Die gemessenen Streuamplituden  $a_M$  der Mischungen bildeten ein überbestimmtes System für die Streuamplituden von D<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>O. Dieses System wurde nach der Methode der kleinsten Quadrate ausgewertet und lieferte für die gebundenen Moleküle D<sub>2</sub>O und H<sub>2</sub>O die ausgeglichenen Werte mit einfacher statistischem Fehler:

$$a_{\text{H}_2\text{O}} = -1,679 \pm 0,004 \text{ F},$$

$$a_{\text{D}_2\text{O}} = 19,148 \pm 0,004 \text{ F}.$$

Die mit diesen Werten berechneten Streuamplituden der Mischungen liegen auf einer Geraden, trägt man sie gegen die molare Konzentration an D<sub>2</sub>O auf. Die Abweichung der Meßpunkte von dieser Geraden ist in Abb. 6 dargestellt. Die Punkte liegen statistisch verteilt auf beiden Seiten der Geraden. Die Maximalfehler schließen die Gerade noch ein. Es kann daher geschlossen werden, daß die Messungen frei von systematischen Fehlern sind, die sich in einer nichtstatistischen Verteilung der Meßpunkte um die Gerade geäußert hätten.

Mit der Streuamplitude für das gebundene Wasserstoffatom  $a_{\text{H}} = -3,740 \pm 0,003 \text{ F}$ <sup>12</sup> ergeben sich

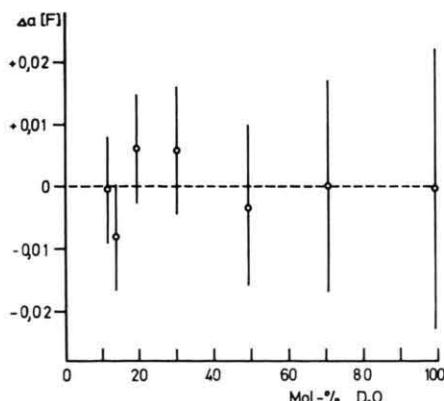


Abb. 6. Abweichung der Meßpunkte  $a_M$  von der Ausgleichsgeraden durch  $a_{D_2O}$  und  $a_{H_2O}$ . Die eingezeichneten Maximalfehler setzen sich aus dreifachen statistischen Fehlern von  $a_M$  und aus dem Maximalfehler der Konzentrationsbestimmung zusammen.

aus den obigen ausgeglichenen Werten die Streuamplituden für das gebundene Sauerstoff- und Deuteriumatom.

$$a_O = 5,801 \pm 0,006 \text{ F},$$

$$a_D = 6,673 \pm 0,006 \text{ F}.$$

Nimmt man die Neutron-Elektron-Streuamplitude zu  $a_{ne} = -0,00146 \text{ F}$ <sup>12</sup> an, so wird die Streuamplitude des gebundenen Deuteriumkernes

$$a_{DK} = 6,674 \pm 0,006 \text{ F}.$$

Da systematische Fehler bei der Fallhöhenmessung und bei der Behandlung des schweren Wassers mit großer Sicherheit ausgeschlossen werden können, wird auch hier der berechnete einfache statistische Fehler angegeben.

Das Ergebnis ist in Übereinstimmung mit dem Wert von Koester und Ungerer<sup>8</sup>, jedoch wesentlich genauer. Der große Unterschied (77 unserer Fehlerbreiten) zum Wert  $6,21 \pm 0,04$  von Bartolini et al.<sup>4</sup> kann nicht durch systematische Fehler in unserer Methode erklärt werden.

Herrn Dr. Koester möchte ich für viele wertvolle Diskussionen und Anregungen sowie seine stete Hilfe bei dieser Arbeit besonders danken. Die Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung und das Institut für Geochemie der TU München halfen freundlicherweise bei der Isotopenanalyse.

Nicht zuletzt danke ich den Mitarbeitern des Reaktorbetriebes am FRM für ihre Unterstützung bei der Durchführung der Messungen.

- <sup>1</sup> L. M. Delves u. A. C. Philpps, Rev. Mod. Phys. **41**, 497 [1969].
- <sup>2</sup> D. G. Hurst u. J. Alcock, Can. J. Phys. **29**, 36 [1951].
- <sup>3</sup> E. Fermi u. L. Marshall, Phys. Rev. **75**, 578 [1949].
- <sup>4</sup> W. Bartolini et al., Phys. Rev. **174**, 313 [1968].
- <sup>5</sup> W. Gissler, Z. Kristallographie **118**, 149 [1963].
- <sup>6</sup> J. Nikitin et al., First Geneva Conf. **2**, 81 [1955].
- <sup>7</sup> Brookhaven National Laboratory Report BNL 325 [1964].
- <sup>8</sup> L. Koester u. H. Ungerer, Z. Physik **219**, 300 [1969].
- <sup>9</sup> H. Maier-Leibnitz, Z. angew. Phys. **14**, 738 [1962].
- <sup>10</sup> L. Koester, Z. Physik **182**, 328 [1965] u. **198**, 187 [1967].
- <sup>11</sup> W. Dilg, L. Koester u. W. Nistler, Phys. Lett. B **36**, 208 [1971].
- <sup>12</sup> L. Koester u. W. Nistler, Phys. Rev. Lett. **27**, 956 [1971].
- <sup>13</sup> C. Halpern, Phys. Rev. **88**, 1003 [1952].
- <sup>14</sup> L. Kirshenbaum, Physical Properties and Analysis of Heavy Water, New York 1951.
- <sup>15</sup> G. S. Kell, J. Chem. Eng. Data **12**, 66 [1967].
- <sup>16</sup> F. Kohlrausch, Praktische Physik, Band 3.