

EUR 4455 d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

MESSUNG DER STREUQUERSCHNITTE VON
FLÜSSIGEM UND FESTEM WASSERSTOFF,
DEUTERIUM UND DEUTERIUMHYDRID FÜR
THERMISCHE NEUTRONEN

von

W.-D. SEIFFERT

1970



Gemeinsame Kernforschungsstelle
Forschungsanstalt Ispra - Italien

Hauptabteilung Reaktorphysik
Experimentelle Neutronenphysik

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 3,70	FF 5,60	FB 50,—	Lit. 620,—	Fl. 3,60
------------------------	---------	---------	------------	----------

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von Guyot, s.a.
Brüssel, April 1970.

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

d

RESULTS OF THE SCATTERING CROSS SECTIONS OF
THERMAL NEUTRONS BY LIQUID AND SOLID
HYDROGEN, DEUTERIUM AND DEUTERIUM
MONOGENERIC MOLECULES by W.-D. SEIFFERT

Atomic Energy Community - EURATOM
Research Center - Ispra Establishment (Italy)
Physics Department - Experimental Neutron Physics
April 1970 - 36 Pages - 7 Figures - BF 50

Results of the scattering cross sections for thermal neutrons by liquid and solid normal-H₂, para-H₂, D₂ and HD are presented. The experimental data for liquid and solid para-H₂ and HD show clearly coherent scattering. The experimental data for liquid and solid para-H₂ and HD show a sharp increase in the scattering cross section with excitation of the first rotational level. The experimental data are compared with numerical calculations.

EUR 4455 d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

MESSUNG DER STREUQUERSCHNITTE VON
FLÜSSIGEM UND FESTEM WASSERSTOFF,
DEUTERIUM UND DEUTERIUMHYDRID FÜR
THERMISCHE NEUTRONEN

von

W.-D. SEIFFERT

1970



Gemeinsame Kernforschungsstelle
Forschungsanstalt Ispra - Italien

Hauptabteilung Reaktorphysik
Experimentelle Neutronenphysik

ZUSAMMENFASSUNG

Die Streuquerschnitte von flüssigem und festem normal-Wasserstoff, para-Wasserstoff, Deuterium und Deuteriumhydrid für thermische Neutronen wurden bei verschiedenen Temperaturen gemessen. Feste Proben von para-Wasserstoff zeigen ausgeprägte Braggstreuung. Flüssige Proben von Deuterium und para-Wasserstoff zeigen ebenfalls deutliche Kohärenzerscheinungen, was auf eine starke Nahordnung der Moleküle schliessen lässt. Bei para-Wasserstoff und Deuteriumhydrid ist das Einsetzen der Streuung mit Rotationsanregung deutlich zu sehen. Die Lage der Einsatzzpunkte zeigt, dass die Moleküle in flüssigem Wasserstoff nicht frei beweglich sind. Nach dem Einsetzen der Rotationsanregung verlaufen die Streuquerschnitte von flüssigem und festem para-Wasserstoff verschieden, was sich aus Unterschieden der Dynamik von Flüssigkeit und Festkörper erklären lässt.

SCHLAGWORTE

MEASUREMENT
SCATTERING
CROSS SECTIONS
THERMAL NEUTRONS
LIQUIDS

INELASTIC SCATTERING
EXCITATION
ENERGY LEVELS
NUMERICALS

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Allgemeine
Wissenschaften der Technischen Hochschule München zur
Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

genehmigten Dissertation über

"Messung der Streuquerschnitte von flüssigem und festem
Wasserstoff, Deuterium und Deuteriumhydrid für thermische
Neutronen"

des Diplomphysikers Wulf-Dieter Seiffert

Berichterstatter: Priv.-Doz. Dr. W. Kley
Prof. Dr. E. Lüscher

Die Dissertation wurde am 3. 10. 1969 bei der Technischen
Hochschule München eingereicht und durch die Fakultät für
Allgemeine Wissenschaften am 15. 10. 1969 angenommen.

Inhalt *

1. Einleitung
2. Die Streuung thermischer Neutronen an den Molekülen der Wasserstoffisotope
3. Meßanordnung und Auswertung
 31. Meßanordnung
 311. Das Flugzeitspektrometer
 312. Der Kryostat
 313. Die Probenherstellung
 32. Auswertung der Meßergebnisse
 321. Berechnung der Streuquerschnitte aus den Meßwerten
 322. Die Fehler der Streuquerschnitte
4. Diskussion der Meßergebnisse
 41. Die kohärente Streuung an festem para-Wasserstoff
 42. Braggstreuung an flüssigen Proben
 43. Die Lage der Einsatzpunkte der Rotationsanregung
 44. Die Anregung des ersten Rotationsüberganges in flüssigem und festem para-Wasserstoff
5. Rechnungen und Vergleich mit den Meßergebnissen
 51. Berechnung des Streuquerschnittes von flüssigem Deuteriumhydrid
 52. Berechnung des Streuquerschnittes von festem para-Wasserstoff
 53. Vergleich der Meßergebnisse und Rechnungen

Tabelle der Meßergebnisse

Literaturverzeichnis

Abbildungen

* Manuskript erhalten am 30. Oktober 1969

1. Einleitung

Die Kohärenzeigenschaften der Streuquerschnitte von normal-Wasserstoff, para-Wasserstoff, Deuterium und Deuteriumhydrid für thermische Neutronen sind verschieden. Die zwischenmolekularen Kräfte und damit die Strukturen von Flüssigkeit beziehungsweise Festkörper sind für die verschiedenen Moleküle gleich. Die dynamischen Eigenschaften unterscheiden sich nur durch einen massenabhängigen Faktor. Die Wasserstoffmoleküle bieten deshalb die Möglichkeit, die Neutronenstreuung an kohärent und inkohärent streuenden Proben mit gleicher Struktur und Dynamik zu untersuchen. Zur Bestimmung von Betrag und Vorzeichen der Streulängen des Protons wurden mehrmals die Streuquerschnitte von gasförmigem und flüssigem normal- und para-Wasserstoff gemessen./1/2/3/4/5/. Nur McReynolds und Whittemore interpretierten den Streuquerschnitt von flüssigem normal- und para-Wasserstoff in Hinblick auf Struktur und Dynamik der Probe./6/.

Eine Messung der Streuquerschnitte von gasförmigem normal- und ortho-Deuterium bei einer Neutronenenergie von 4,7 meV ergab die kohärente und inkohärente Streulänge des Deuterons. Die Querschnitte des ortho- und des para-Moleküls unterscheiden sich bei dieser Energie nur um 2,5 Prozent./7/. Für das Mischmolekül HD sind keine Messungen des Streuquerschnittes bekannt.*)

Diese Arbeit beschreibt Messungen der Streuquerschnitte von flüssigem und festem normal- und para-Wasserstoff, Deuterium und Deuteriumhydrid. Die Neutronenenergien bewegten sich zwischen 1 und 80 meV. Die Ergebnisse werden auf Einflüsse von Struktur und Dynamik der flüssigen und festen Phase hin untersucht.

*) Anselm hat vorgeschlagen, die Streulänge von Tritium durch Messung der Streuquerschnitte von T_2 , HT und DT zu bestimmen./8/. Wegen der hohen β -Aktivität von Tritium dürften diese Messungen sehr schwierig sein.

2. Die Streuung thermischer Neutronen an den Molekülen der Wasserstoffisotope

Die Moleküle des leichten und schweren Wasserstoffes, H_2 und D_2 , treten in zwei Modifikationen auf, die sich durch ihre Parität unterscheiden. Sie werden mit ortho- und para- H_2 beziehungsweise D_2 bezeichnet. Das unsymmetrische Molekül HD zeigt diese Erscheinung nicht. Die hiermit verbundenen, besonderen Eigenschaften der Moleküle H_2 und D_2 in Bezug auf Spinsumme und Rotation sind in Tabelle 1 angedeutet. Jede Wasserstoffprobe besteht aus einer Mischung von ortho- und para-Molekülen. Die Zusammensetzung ist temperaturabhängig. Bei Raumtemperatur liegt praktisch bereits das Hochtemperaturgleichgewicht vor, mit 25 % para- und 75 % ortho- H_2 beziehungsweise mit 33 % para- und 67 % ortho- D_2 . Mit sinkender Temperatur verschieben sich die Gleichgewichte zu reinem para- H_2 beziehungsweise ortho- D_2 .

Die Energien der inneren Schwingungen der Moleküle liegen oberhalb von einigen hundert meV. Bei Probertemperaturen von weniger als 20 °K spielen also nur noch die Nullpunktsschwingungen eine Rolle. Weiterhin sind in diesem Temperaturbereich nur noch die tiefsten Rotationszustände angeregt, bei para- H_2 und ortho- D_2 also das Niveau $J=0$ und bei ortho- H_2 sowie para- D_2 das Niveau $J=1$. Die Energien der Rotationsübergänge ergeben sich zu

$$E_{JJ'} = (J'(J'+1) - J(J+1))/2I.$$

J (J') Rotationsquantenzahl vor (nach) dem Übergang

I Trägheitsmoment des Moleküls

Die sich mit den Trägheitsmomenten $7,4 \text{ meV}^{-1}$ für H_2 , $3,8 \text{ meV}^{-1}$ für D_2 und $5,7 \text{ meV}^{-1}$ für HD ergebenden Zahlenwerte sind in Tabelle 1 angegeben. /9/. Sie sind mit E_g bezeichnet und gelten für im Schwerpunkt gebundene, jedoch frei drehbare Moleküle.

Molekül	Modifikation	Spinsumme	J	$\sigma_{JJ'}$	E_g	E_f	B
H ₂	para-H ₂	0	0	σ_{00}	14,8	22,2	0
				σ_{01}			1
	ortho-H ₂	1	1	σ_{11}	29,6	44,4	0,97
σ_{10}	1						
σ_{12}	1						
D ₂	para-D ₂	1	1	σ_{11}	15,2	19,0	0,09
				σ_{10}			1
				σ_{12}			1
	ortho-D ₂	0 oder 2	0	σ_{00}	7,6	9,5	0,20
σ_{01}	1						
HD		1/2 oder 3/2	0	σ_{00}	11,4	15,2	0,9 [*])
				σ_{01}			0,9 [*])
				σ_{02}			0,9 [*])

Tabelle 1 Zusammenstellung der Eigenschaften und Teilquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope

J bezeichnet den tiefstmöglichen Rotationszustand, J' den Endzustand eines Rotationsüberganges. E_g und E_f sind die Anregungsenergien der Rotationsübergänge gebundener und freier Moleküle. Die Größe B gibt den inkohärenten Anteil der Teilquerschnitte, bezogen auf ihren Gesamtwert an.

^{*}) Bei HD ist das Verhältnis zwischen inkohärenter und kohärenter Streuung leicht von der Neutronenenergie abhängig. Der angegebene Wert B=0,9 ist als mittlerer Anhaltswert zu verstehen.

Soll ein freies Molekül in einen höheren Rotationszustand versetzt werden, dann steht nur ein Bruchteil der Neutronenenergie im Laborsystem als Anregungsenergie zur Verfügung. Der Bruchteil ergibt sich mit der Molekülmasse m und der Neutronenmasse n aus dem Impulserhaltungssatz zu $E' = E \cdot m/(m+n)$.

Die Anregungsschwellen liegen also für freie Moleküle höher als für gebundene. In Tabelle 1 sind sie mit E_f bezeichnet.

Die Streuquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope ergeben sich aus der Summe der Teilquerschnitte $\sigma_{JJ'}$ für die verschiedenen Rotationsübergänge. Die ersten Teilquerschnitte sind ebenfalls in Tabelle 1 aufgeführt.

Bei der Streuung von Neutronen an Kernen mit Spin treten zwei verschiedene Streulängen auf, und zwar a_+ bei paralleler Anordnung von Kernspin und Neutronenspin und a_- bei antiparalleler Anordnung. Linearkombinationen dieser beiden Streulängen ergeben die kohärente Streulänge a_k und die inkohärente Streulänge a_i des Kerns.

$$a_k = \frac{S+1}{2S+1} a_+ + \frac{S}{2S+1} a_- , \quad a_i = \frac{(S(S+1))^{1/2}}{2S+1} (a_+ - a_-) .$$

S Kernspinzahlnzahl

Kern	a_+	a_-	a_k	a_i	a_k^2	a_i^2
Proton	0,537	-2,373	<u>0,19</u>	-1,26	<u>0,036</u>	<u>1,588</u>
Deuteron			<u>0,45</u>	<u>+0,28</u>	<u>0,202</u>	<u>0,078</u>
	10^{-12} cm				barn	

Tabelle 2 Streulängen des Protons und des Deuterons

Die unterstrichenen Werte sind für die Streuquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope von Bedeutung.

Messungen der Streuquerschnitte von D_2 ergaben nur die Quadrate der kohärenten und inkohärenten Streulängen. Das Vorzeichen der kohärenten Streulänge des Deuterons konnte ebenfalls bestimmt werden./10/. Damit sind für die Streulängen a_+ und a_- zwei Wertepaare möglich, zwischen denen noch nicht entschieden werden kann. Da in diesem Zusammenhang nur die Werte der kohärenten Streulängen des Protons und des Deuterons sowie die Quadrate der Streulängen a_k und a_l eine Rolle spielen, ist diese Unsicherheit ohne Bedeutung (unterstrichene Werte in Tabelle 2).

Die Teilquerschnitte $\sigma_{JJ'}$ lassen sich als Produkt von zwei Funktionen darstellen. Die eine Funktion hängt von den Streulängen der Kerne des jeweiligen Moleküls ab, die andere Funktion von der Neutronenenergie, der Energie des Rotationsüberganges, vom Impulsübertrag und von den Massen der beiden Kerne des Moleküls. Die expliziten Ausdrücke finden sich in der Literatur./8/11/12/13/14/15/. Zwei Beispiele finden sich im letzten Abschnitt dieser Arbeit. Der erste Faktor der Ausdrücke für die Teilquerschnitte kann von der kohärenten, der inkohärenten oder aber von beiden Streulängen abhängen. Legt man die aus Tabelle 2 ersichtlichen Größenverhältnisse der Streulängen zugrunde, dann ergeben sich allgemeine Aussagen über die Teilquerschnitte und damit über die Streuquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope.

Para-Wasserstoff

Genügt die Neutronenenergie nicht zur Anregung des ersten Rotationsüberganges, dann reduziert sich der Streuquerschnitt von para-Wasserstoff auf den Teilquerschnitt σ_{00} . Der Teilquerschnitt σ_{00} wird allein von der kleinen kohärenten Streulänge des Protons bestimmt. Mit dem Einsetzen der Rotationsanregung kommt der Teilquerschnitt σ_{01} hinzu. Der Teilquerschnitt σ_{01} wird allein von der inkohärenten Streulänge des Protons bestimmt und ist damit bis zu etwa 50 mal größer als σ_{00} . Der Streuquerschnitt von para-Wasserstoff steigt also mit dem Einsetzen der Rotationsanregung steil an.

Ortho-Wasserstoff

Bei kleinen Neutronenenergien sind der rein inkohärente Teilquerschnitt σ_{10} und der fast vollständig inkohärente Teilquerschnitt σ_{11} wirksam. Mit dem Einsetzen der Rotationsanregung kommt der ebenfalls rein inkohärente Teilquerschnitt σ_{12} hinzu. Der Streuquerschnitt von ortho-Wasserstoff ist also für alle thermischen Neutronen praktisch inkohärent.

Normal-Wasserstoff

Normal-Wasserstoff besteht zu 75 % aus ortho-Wasserstoff. Die inkohärente Streuung überwiegt daher im gesamten thermischen Energiebereich fast vollständig.

Deuterium

Sowohl für para- als auch für ortho-Deuterium überwiegt für thermische Neutronen der kohärente Anteil der Streuung stark. Die Streuquerschnitte von ortho- und para-Deuterium stimmen auch quantitativ weitgehend überein./7/13/. Auf eine getrennte Messung kann deshalb verzichtet werden.

Deuteriumhydrid

Der Streuquerschnitt des Mischmoleküls ist überwiegend inkohärent, einmal wegen der dominierenden Größe der inkohärenten Streulänge des Protons, zum anderen auf Grund der Existenz von zwei HD-Molekülen mit verschiedener Spinsumme ($1/2$ und $3/2$) und deshalb verschiedenen Streueigenschaften. Mit zunehmender Neutronenenergie setzt die Streuung mit Anregung von Rotationsübergängen ein. Alle Teilquerschnitte zeigen den gleichen Aufbau und sollten deshalb von vergleichbarer Größe sein./8/. An den Einsatzpunkten der Teilquerschnitte mit Rotationsanregung sind deshalb Unstetigkeiten im Verlauf des Streuquerschnittes von HD zu erwarten.

3. Meßanordnung und Auswertung

31. Meßanordnung

311. Das Flugzeitspektrometer

Abbildung 1 zeigt einen Schnitt durch die Anlage. Ein Filter aus zwei mit flüssigem Stickstoff gekühlten Wismut-Einkristallen von je 20 cm Länge hält den Untergrund an γ -Strahlung und schnellen Neutronen klein. /16/. Der Untergrund lag bei 8 Impulsen pro Kanal und Stunde, wovon weniger als 10 % Hallenuntergrund sind. Das Cadmiumverhältnis bei einer Neutronenwellenlänge von 10 Å beträgt für den gepoppten Strahl 34 und für den ungehoppten Strahl 7000.

Der Chopper besitzt gekrümmte Schlitze von 1 m Krümmungsradius, 100 mm Schlitzlänge und 1,5 mm Schlitzhöhe. Das Maximum der Choppertransmission liegt damit bei 0,13 meV, während ein Cut Off nach hohen Energien bei dieser Schlitzgeometrie nicht auftritt. Als Monitor diene eine Uran-235 Spaltkammer mit einer Ansprechwahrscheinlichkeit von 10^{-3} bei 25 meV. Eine Blende aus Borplastik mit einer Öffnung von 90 % des rechnerischen Strahlquerschnittes ist zur Ausschließung etwaiger Kleinwinkelstreuung unmittelbar hinter der Probe angeordnet. Zwischen dieser Blende und der Zählerbank verläuft der Strahl im Vakuum.

Die Zählerbank besteht aus zwei hintereinander liegenden Paaren von BF_3 -Zählrohren mit 5 cm Durchmesser und einer aktiven Länge von 12 cm. Eine weitere Borplastikblende läßt nur den rechnerischen Strahlquerschnitt am Ort der Zählerbank unbedeckt. Zur Herabsetzung der Totzeitverluste wurde der Strahl mit einem Streuer aus 1,2 cm Beryllium und 1,3 cm Blei geschwächt. Aus dem gleichen Grund wurde der Vielkanalanalysator als Multiscaler betrieben. Die damit erreichte Trennung von Schalt- und Zählvorgang bewirkt zwar einerseits einen Verlust von 40 % der Intensität (16 μsec Schaltzeit bei 40 μsec Kanalbreite), drückt aber die Totzeitverluste unter 1,5 %, was sehr wertvoll für die Messgenauigkeit ist.

Der Flugweg ist 6,5 m lang. Einige Werte für die Auflösung der Anlage sind in den Abbildungen der Streuquerschnitte in Form von Dreiecken über der Grundlinie eingetragen.

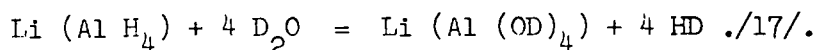
312. Das Probensystem

Abbildung 2 zeigt einen Schnitt durch den für alle Messungen verwendeten Kryostaten. Er arbeitet nach dem Verdampferprinzip. Die jeweils zur Kühlung benötigte Menge flüssigen Heliums wird über eine ständig angeschlossene Transferleitung mit kleinem Querschnitt angesaugt. Im Raum um die Probenkammer verdampft das Helium. Der Querschnitt des Heliumsystems beträgt an dieser Stelle etwa das 700-fache des Transferleitungsquerschnittes, entsprechend dem Volumenunterschied zwischen Flüssigkeit und Gas. Dadurch kann ein stabiler Kühlmittelfluß erreicht werden. Das kalte Helium kühlt anschließend noch ein Strahlenschild. Ein zweites Strahlenschild wird mit flüssigem Stickstoff auf 77°K gehalten. Die Probenlänge wird durch einfaches Austauschen indiumgedichteter Flansche verändert.

Das Probengas wurde aus unter Normaldruck stehenden Behältern einkondensiert, die aus Sicherheitsgründen auch während der Meßzeit angeschlossen blieben. In der Probenkammer ist ein Kohlewiderstand angebracht, dessen Temperaturkennlinie mit Hilfe von Dampfdruckmessungen geeicht wurde. Die Widerstandswerte dienen dann zur Bestimmung der Proben temperatur und zur Regelung der Kühlmittelförderung und damit der Proben temperatur. Die Temperaturkonstanz war besser als 1 ‰. Der Verbrauch des Kryostaten bewegt sich zwischen 1200 cm^3 flüssigen Heliums pro Stunde bei einer Proben temperatur von $3,8^{\circ}\text{K}$ und $120\text{ cm}^3/\text{h}$ bei 20°K .

313. Die Probenherstellung

Deuterium und normal-Wasserstoff standen mit einer Reinheit von 99,995 ‰ zur Verfügung. Die Deuteriumhydridprobe wurde hergestellt mit Hilfe der Reaktion



Die Reaktion verlief in Dibutyläther als dämpfendem Medium. Mitgerisener Äther wurde in einer mit Stickstoff gekühlten Falle ausgefrozen. Ein Massenspektrum ergab eine Reinheit von 94 % HD bei 5,5 % H₂ und 0,5 % D₂ Beimischung.

Die Umwandlung von normal- in para-Wasserstoff erfolgte in der Probenkammer. Dazu wurde der Boden der Probenkammer mit einem Gemisch von Aktivkohle und Neodymoxid bedeckt, die beide die Umwandlung katalysieren. Der einkondensierte Wasserstoff wurde für 24 Stunden auf 14 °K gehalten. Die Restkonzentration von ortho-Wasserstoff 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 Probenezufuhr erfolgt hingegen von oben. Durch sehr langsames Einfrieren der Proben konnte deshalb erreicht werden, daß nachkondensierende Flüssigkeit das durch die Dichteänderung freiwerdende Volumen ausfüllte. 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.

32. Auswertung der Messungen

321. Berechnung der Streuquerschnitte aus den Meßwerten

Aus der Zählrate mit leerer Probenkammer, I_0 , und mit gefüllter Probenkammer, I , errechnet sich der Streuquerschnitt nach folgendem Ausdruck:

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

N Zahl der Moleküle pro cm³

d Probendicke

- I_0 Zählrate mit leerer Probenkammer (totzeitkorrigiert)
- I Zählrate mit gefüllter Probenkammer (totzeitkorrigiert)
- U_0 Untergrund mit leerer Probenkammer
- U Untergrund mit gefüllter Probenkammer
- t_0 Meßzeit mit leerer Probenkammer
- t Meßzeit mit gefüllter Probenkammer

Die Totzeitverluste haben die Größe

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

- I', I wahre und gemessene Zählrate
- p kleinstes Zeitintervall zwischen zwei Ionenlawinen im Zählrohr, das noch zu zwei getrennten Fortschaltungen des Zählers führt
- t Meßzeit

Bei kleinen Werten des Exponenten entwickelt man, womit sich die wahre Zählrate ergibt :

$$I' = I (1 + Ip/t).$$

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

Zur Auswertung wurden Dichtewerte aus einer Datensammlung des NBS herangezogen./18/. Die Schwankungen der Monitorzählraten lagen nicht wesentlich über ihren statistischen Fehlern. Die Zählraten wurden daher über die Meßzeiten normiert.

Die so erhaltenen Werte für die Streuquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope sind in den Abbildungen 3 bis 7 sowie in Tabellenform am Ende der Arbeit wiedergegeben.

322. Die Fehler der Streuquerschnitte

Der Fehler der Streuquerschnitte setzt sich aus einem apparativ beding-

ten Teil und den statistischen Fehlern der Zählraten zusammen. Der apparative Fehler berücksichtigt den Fehler der Probendicke, den Fehler der Totzeitkorrektur und den Fehler, der durch Schwankungen der Strahlintensität zustande kommen kann. Der letzte Beitrag ist zu berücksichtigen, da die Normierung der Zählraten über die Meßzeiten erfolgte. Ein Dichtefehler wurde nicht angenommen. Im Falle von HD bewirkt die Verunreinigung der Probe einen Fehler von $\pm 5\%$ in den Streuquerschnitten, je nachdem, ob die Wasserstoffbeimischung in Form von ortho- oder para-H₂ vorlag. Alle weiteren Fehler, wie zum Beispiel die Fehler der Meßzeiten, können vernachlässigt werden.

Die Fehler der Wirkungsquerschnitte variieren mit den Zählraten und ändern sich über den gemessenen Energiebereich teilweise recht stark. Die Fehler bei einigen typischen Neutronenenergien sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Probe	Fehler	2 meV	5 meV	20 meV	70 meV
n-H ₂	app.	2,1	2,2	2,9	2,3
	stat.	1,0	0,5	0,3	1,0
p-H ₂	app.	1,1	1,2	0,8	0,5
	stat.	1,9	0,9	0,2	2,3
D ₂	app.	2,8	2,4	2,9	2,8
	stat.	5,2	2,1	2,0	7,0
HD	app.	7,6	8,1	8,5	8,3
	stat.	2,4	1,7	1,5	5,4

Tabelle 3 Fehler der Streuquerschnitte in Prozent

app. apparativer Fehler (%)
 stat. statistischer Fehler (%)

4. Diskussion der Meßergebnisse

Die Streuquerschnitte von flüssigem und festem normal-H₂, para-H₂, D₂ und HD sind in den Abbildungen 3 und 4 als Funktion der Neutronenenergie aufgetragen.

Der Streuquerschnitt von normal-H₂, der auf Grund seines Anteils von 75 % ortho-H₂ im gesamten 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 11 meV Neutronenenergie ist die erwartete Unstetigkeit im Verlauf auf Grund des Einsetzens der Anregung des ersten Rotationsüberganges deutlich erkennbar. Der Einsatzzpunkt der Streuung mit Anregung des zweiten Rotationsniveaus ist nicht aufgelöst.

Da Deuterium überwiegend kohärent streut, 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. Trotzdem läßt das bei langsamem Einfrieren reproduzierbar erhaltene Bild des Streuquerschnittes nur den Schluß zu, daß die Deuteriumproben weitgehend einkristallin waren. Für einen Deuteriumpolykristall ist der Cut Off der Braggstreuung bei $6,13 \text{ \AA}$ zu erwarten^{*)}. Die Messungen ergaben an dieser Stelle keine Andeutung eines Cut Off. Ein Deuterium-Einkristall mit zum Strahl paralleler c-Achse würde bei $5,84 \text{ \AA}$ ein Maximum des Streuquerschnittes durch Rückwärtsstreuung an den (002)-Ebenen zeigen. In Abbildung 6 ist der Verlauf des Streuquerschnittes von Deuterium im engeren Bereich des Cut Off als Funktion der Wellenlänge der Neutronen dargestellt. Tatsächlich zeigt sich bei $5,82 \text{ \AA}$ ein ausgeprägtes Maximum, bei sonst glattem und niedrigem Verlauf des Streuquerschnittes. Es ist also zu folgern, daß Deuterium, wie

*) Die Wasserstoffisotope kristallisieren in hexagonal dichtester Kugelpackung mit den Gitterkonstanten $a=3,54$, $c=5,91 \text{ \AA}$ für D₂ und $a=3,76$, $c=6,10 \text{ \AA}$ für H₂. /19/.

letztlich alle Molekülkristalle, eine ausgeprägte Tendenz zeigt, wenige große Einkristalle zu bilden. Der Streuquerschnitt von flüssigem Deuterium zeigt im Bereich des Cut Off eine stark fallende Tendenz. Der Streuquerschnitt von flüssigem para-H₂ zeigt den aus den Messungen von McReynolds und Whittemore bekannten Verlauf mit starkem Anstieg am Einsatzpunkt der Rotationsanregung./6/. Im Bereich von 2 meV ist auch an flüssigem para-H₂, wie an flüssigem D₂, ein Absinken des Streuquerschnittes zu beobachten. Dies ist auch bei der Messung von McReynolds und Whittemore der Fall, die jedoch nicht auf diese Erscheinung eingehen. Der Verlauf des Wirkungsquerschnittes in der festen Phase entspricht, im ganzen gesehen, dem in der flüssigen Phase. Der Einsatzpunkt der Rotationsanregung ist jedoch wesentlich schärfer ausgeprägt. Unterhalb der Anregungsschwelle ist der Streuquerschnitt von festem para-H₂ wegen des Auftretens von Braggstreuung deutlich strukturiert. Die wesentlichen Schlußfolgerungen aus den Meßergebnissen sind im folgenden zusammengefaßt.

41. Die kohärente Streuung an festem para-Wasserstoff

In Abbildung 5 ist der Verlauf des Streuquerschnittes von festem para-H₂ im Bereich von 5 bis 7 Å als Funktion der Neutronenwellenlänge aufgetragen. Man sieht verhältnismäßig wenige, gut ausgeprägte Spitzen des Streuquerschnittes, die durch Braggreflexionen an den Kristallebenen hervorgerufen werden. Die festen Proben von para-Wasserstoff bestehen also ebenfalls aus wenigen Einkristallen. Ein Polykristall würde einen glatt verlaufenden Streuquerschnitt mit scharfem Abfall bei der Cut Off Wellenlänge (6,50 Å) aufweisen.*⁾ Bei sinkender Proben temperatur steigt die Intensität der Braggreflexe an festem para-H₂, während der Streuquerschnitt

*⁾ Die Tatsache, daß die feste para-Wasserstoffprobe weniger einkristallin erscheint als die Deuteriumprobe, ist vermutlich dadurch zu erklären, daß das Probenvolumen von para-Wasserstoff gut dreimal größer ist.

jenseits des Cut Off mit der Phononenbesetzung abnimmt. Die Ergebnisse an festem para-Wasserstoff bestätigen direkt die Aussage des zur Berechnung des Streuquerschnittes von para-H₂ Molekülen verwendeten theoretischen Formalismus, 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-H₂ 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-H₂ 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.

42. Braggstreuung an flüssigem para-Wasserstoff und Deuterium

Die Streuquerschnitte flüssiger Proben von Deuterium und para-Wasserstoff zeigen im Bereich um 6 \AA Neutronenwellenlänge einen deutlichen Abfall (Abbildungen 5 und 6). Dieser Abfall fällt recht genau zusammen mit den Cut Off Wellenlängen idealer Polykristalle, 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 ($3,8 \text{ \AA}$) und zweitnächsten Nachbarn gefunden hat. /20/. Bleibt man bei dieser Interpretation, dann 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 (Abbildung 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 Braggstreuung vorliegt.*)

43. Die Lage der Einsatzpunkte der Rotationsanregung

Die streuenden Moleküle sind beim Übergang von der Gasphase zur flüssigen und festen Phase zunehmend als gebunden zu betrachten. Die Rotationsanregung ist also bei immer kleineren Neutronenenergien zu erwarten. Wie bereits erwähnt, ist beim Stoß mit einem freien Molekül eine um den Faktor $(m+n)/m$ größere Neutronenenergie zur Anregung der Rotation nötig. Der Faktor $(m+n)/m$ errechnet sich für H_2 zu 1,5, für HD zu 1,33 und für D_2 nur noch zu 1,2. Die Messungen zeigen die Einsatzpunkte der ersten Rotationsanregung von H_2 und HD jedoch bei Energien, die vermuten lassen, daß die Moleküle auch in der flüssigen Phase nicht frei beweglich sind. Man kann an flüssigem und festem HD den Einsatzpunkt der Rotationsanregung gleichermaßen bei der Schwellenergie für gebundene Moleküle (11,4 meV) erkennen. Der Einsatzpunkt ist lediglich in der Flüssigkeit etwas verwaschen. In festem para- H_2 setzt die Rotationsanregung ebenfalls bei der Schwellenergie für gebundene Moleküle (14,8 meV) ein. In flüssigem para- H_2 setzt die Anregung bereits unterhalb dieser Schwelle ein, was nur durch zusätzliche Energiebeiträge aus dem thermischen Energieinhalt der Probe erklärt werden kann.

44. Die Anregung des ersten Rotationsüberganges in flüssigem und festem para-Wasserstoff

Die Streuquerschnitte von festem und flüssigem para-Wasserstoff unterscheiden sich nicht nur in der Lage des Rotationseinsatzes. Auch der Verlauf

*) Eine Zunahme der ortho-Konzentration auf Grund der Temperaturerhöhung würde dem beobachteten Verhalten des Streuquerschnittes genau entgegenwirken und eine Zunahme bei allen Neutronenenergien bewirken. Dies bestätigt nochmals die Vernachlässigbarkeit der ortho-Restkonzentration.

nach dem Einsetzen der Rotationsanregung ist verschieden. Für Neutronenenergien von mehr als etwa 22 meV stimmen die Streuquerschnitte von festem und flüssigem para-Wasserstoff quantitativ im Rahmen der Meßfehler überein. Der Querschnitt von flüssigem para-Wasserstoff ist durch früheres Einsetzen der Rotationsanregung und durch monotonen Ansteigen nach dem Einsatzzpunkt gekennzeichnet. Der Querschnitt von festem para-Wasserstoff zeigt das Einsetzen der Rotationsanregung genau bei der Anregungsenergie für gebundene Moleküle und weist im Bereich zwischen 17 und 19 meV einen Wendepunkt im Verlauf auf (Abbildung 7). Der unterschiedliche Verlauf der Streuquerschnitte zwischen Anregungsschwelle der Rotation und 22 meV sowie die Verschiebung der Anregungsschwelle kann wohl nur mit den Unterschieden der Dynamik der flüssigen und der festen Phase erklärt werden.

Geht man von der Vorstellung aus, daß die Moleküle in der Flüssigkeit wenn auch behinderte Translationsbewegungen ausführen, dann tritt an die Stelle des Streuquerschnittes bei einer definierten Neutronengeschwindigkeit ein Mittelwert über die Relativgeschwindigkeiten zwischen Neutron und Molekül. Die Relativgeschwindigkeiten ergeben sich aus der Neutronengeschwindigkeit und der Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle. Die Mittelwertbildung erfolgt symmetrisch zur Neutronengeschwindigkeit, bewirkt also eine Verschmierung von Unstetigkeiten im Verlauf des Querschnittes, kann aber keinen Wendepunkt im Verlauf des Querschnittes hervorrufen, der nicht schon im Verlauf des Querschnittes für ruhende Moleküle vorhanden gewesen wäre. Der monoton ansteigende Verlauf des Querschnittes für ruhende Moleküle bleibt also bei dieser Betrachtungsweise auch in der Flüssigkeit erhalten. Weiterhin kann bei genügend hoher Proben temperatur die Rotationsanregung bereits bei Neutronengeschwindigkeiten einsetzen, die für sich allein noch nicht zur Anregung ausreichen würden, da die Relativgeschwindigkeiten für einige Streuvorgänge mit Sicherheit höher liegen.

Im Festkörper geht man davon aus, daß bei einigen Streuvorgängen mit Anregung des ersten Rotationsüberganges zusätzlich ein oder mehrere Phononen angeregt oder ausgelöscht werden. Bei einer Proben temperatur von 6 °K spielt die Phononenabsorption keine wesentliche Rolle mehr. Die Streuung

mit Rotationsanregung sollte also bei der Energieschwelle für gebundene Moleküle einsetzen und zunächst ohne Phononenanregung erfolgen. Erst bei höheren Neutronenenergien wird dann die gleichzeitige Emission eines Phonons wahrscheinlich, während die Wahrscheinlichkeit für die Streuung ohne Phononenanregung bereits wieder abnimmt. Liegen nun die Maxima der Wahrscheinlichkeiten für Streuung ohne und mit gleichzeitiger Anregung eines Phonons genügend weit auseinander, dann könnte im Bereich zwischen den beiden Maxima ein Wendepunkt im Verlauf des Gesamtquerschnittes auftreten, wie er in den Messungen zu beobachten ist.

Bei höheren Neutronenenergien, dann, wenn die Wahrscheinlichkeiten für die gleichzeitige Anregung von einem oder mehreren Phononen bereits überwiegen, sollten die Streuquerschnitte von festem und flüssigem para-Wasserstoff wieder gleich verlaufen. In diesem Energiebereich tritt an die Stelle der zusätzlichen Energieabgabe an das Kontinuum der Molekültranslationen in der Flüssigkeit im Festkörper die zusätzliche Energieabgabe an das Kontinuum der Phononenanregungen, während die nur im Festkörper mögliche in bezug auf das Phononenspektrum elastische Streuung keine Rolle mehr spielt.

5. Rechnungen und Vergleich mit den Meßergebnissen

51. Berechnung des Streuquerschnittes von flüssigem Deuteriumhydrid

Wie bereits ausgeführt, lassen sich die einzelnen Teilquerschnitte der Moleküle der Wasserstoffisotope als Produkt von 2 Faktoren darstellen. Ein Faktor enthält die Abhängigkeit des Teilquerschnittes von den kohärenten und inkohärenten Streulängen der Kerne des Moleküls. Der andere Faktor ist von Impuls, Energie und Masse des Neutrons sowie von Impulsübertrag, Anregungsenergie des jeweiligen Rotationsüberganges, Energieübertrag und den Massen der Kerne des streuenden Moleküls abhängig. Die allgemeine Form der Teilquerschnitte lautet also

$$\sigma_{JJ'} = F(a_k, a_i) f(k_0, k, E_{JJ'}, m_1, m_2, n).$$

a_k, a_i kohärente und inkohärente Streulängen

k_0, k Wellenzahl des Neutrons vor und nach der Streuung
im Schwerpunktsystem

$E_{JJ'}$ Anregungsenergie des Rotationsüberganges JJ'
 m_1, m_2 Massen der Kerne des Moleküls
 n Neutronenmasse.

Die expliziten Ausdrücke für die ortho- und para-Moleküle von Wasserstoff und Deuterium sowie für HD finden sich in der Literatur. /8/11/12/13/14/15/. Als Beispiel soll nur der Ausdruck für Deuteriumhydrid wiedergegeben werden.

Für HD lag bisher nur eine Abschätzung des totalen Wirkungsquerschnittes für gegen Null gehende Neutronenenergie vor /8/13/. Diese Abschätzung berücksichtigt die Nullpunktsschwingungen der Moleküle, was eine Korrektur von 2 bis 3 % ergibt. Hier wird auf diese Korrektur verzichtet. Geht man von den Ausdrücken bei Anselm aus, die für die einfach differentiellen Wirkungsquerschnitte unsymmetrischer, zweiatomiger Moleküle abgeleitet sind, dann ergeben sich nach einer Umformung des Winkelementes in das Element des Phasenraumes für den totalen Wirkungsquerschnitt mit Anregung des Rotationsüberganges von $J=0$ nach $J'=0,1,2,3,\dots$. Integrale der Form

$$\sigma_{0J'} = (\pi/k_0^2)(2J'+1) \left\{ (9/2)(a_{Hk}^2 + a_{Hi}^2) f(J', b_1, b_1, q_1, q_2) + \right. \\
\left. + (81/32)(a_{Dk}^2 + a_{Di}^2) f(J', b_2, b_2, q_1, q_2) + \right. \\
\left. (-1)^{J'} (27/4)(a_{Hk} a_{Dk}) f(J', b_1, b_2, q_1, q_2) \right\} .$$

$$\text{mit } f(J'; b_1, b_2, q_1, q_2) = \int_{q_1}^{q_2} q j_{J'}(b_1 q) j_{J'}(b_2 q) dq .$$

$$q_1 = k_0 - k$$

$$q_2 = k_0 + k$$

$$k = (k_0^2 - \frac{2mn}{m+n} E_{0J'})^{1/2}$$

$$E_{0J'} = J'(J'+1)/2I$$

$$b_1 = 2r_0/3$$

$$b_2 = r_0/3 .$$

Symbole:

- r_0 Gleichgewichtsabstand der Kerne im Molekül
 m Molekülmasse
 n Neutronenmasse
 $J_{J'}$ sphärische Besselfunktion der Ordnung J'
 I Trägheitsmoment des Moleküls
 q Betrag des Impulsübertrages
 $b_{1,2}$ Abstände der Kerne vom Molekülschwerpunkt

Der Streuquerschnitt von HD ergibt sich aus der Summe der Teilquerschnitte für alle infrage kommenden Werte von J' und des Absorptionsquerschnittes,

$$\sigma_{\text{abs}} = \text{const}/k_0,$$

des Protons. Der Absorptionsquerschnitt des Deuterons kann für praktische Zwecke vernachlässigt werden.

Es sei hier darauf hingewiesen, daß in den oben angegebenen Ausdrücken die Abstände der Kerne vom Molekülschwerpunkt (b_1 und b_2) für symmetrische Moleküle gleich werden. In diesem Falle läßt sich die auftretende Summe von drei Produkten zu einem Produkt zusammenfassen. Die Ausdrücke für H_2 und D_2 enthalten nichtsdestoweniger die gleiche Summierung über die beiden Selfterme und einen Interferenzterm für die Streuung an den beiden Kernen des Moleküls. Diese Ausdrücke wurden in der angegebenen Form mit einer Rechenmaschine ausgewertet und ergaben die Streuquerschnitte für freie, im Laborsystem ruhende Moleküle.

Eine etwas bessere Näherung für den Streuquerschnitt von flüssigem Wasserstoff erhält man, wenn man vom freien, ruhenden Molekül zum freien Molekül mit Translation, also zum idealen Gas, übergeht. Die damit notwendig werdende Mittelwertbildung über die Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle erfolgt nach Weinberg und Wigner /21/ mit Hilfe des Ausdruckes

$$\sigma(v) = (4D)^{-1/2} \int_{-\infty}^{\infty} (1+x/v)^2 \sigma_0(v+x) \exp(-x^2/4D) * \\ * (1 - \exp(-v^2/D(1+x/v))) dx .$$

Symbole:

x Molekülgeschwindigkeit

$$D = kT/2m$$

v Neutronengeschwindigkeit

σ_0 Querschnitt des freien, ruhenden Moleküls für die Neutronengeschwindigkeit (v+x) .

Auch dieses Integral wurde mit einer Rechenmaschine ausgewertet. Eine weitere Verbesserung des Modells ist ohne größeren Aufwand noch dadurch möglich, daß den Unterschieden zwischen idealem Gas und der flüssigen Phase durch die Einführung eines Parameters "effektive Masse" des Moleküls Rechnung getragen wird. Auf diesem allerdings etwas willkürlichen Wege können sehr pauschal die Bindungskräfte zwischen den Molekülen in der flüssigen Phase berücksichtigt werden. Da die Rotation in Wasserstoff, selbst in der festen Phase, durch experimentelle Ergebnisse als frei ausgewiesen wird, hat die Vergrößerung der Masse zur effektiven Masse im Molekülschwerpunkt zu erfolgen. Die effektive Masse tritt dann nur im Zusammenhang mit der Translation in Erscheinung, besonders bei der Umrechnung der Neutronendaten in das Schwerpunktsystem, nicht jedoch in den Ausdrücken, die die Rotation beschreiben.

Im einzelnen bewirkt eine Vergrößerung der effektiven Masse eine Stauchung des Energiemaßstabes, bis, im Grenzfall unendlich großer effektiver Masse, Labor- und Schwerpunktsystem zusammenfallen. Die Rotationsanregungen setzen also bei kleineren Neutronenenergien ein. Die Übereinstimmung der Neutronenenergien im Labor- und im Schwerpunktsystem beträgt für H_2 bei einer effektiven Masse von zwei Molekülmassen schon 80 %.

Die berechneten Streuquerschnitte von HD und auch von H_2 und D_2 sind in Abbildung 3 eingetragen.

52. Berechnung des Streuquerschnittes von festem para-Wasserstoff

Es wurde versucht, den Verlauf des Streuquerschnittes von festem para-

Wasserstoff im Bereich des Einsatzpunktes der ersten Rotationsanregung rechnerisch wiederzugeben. Die Rechnung ging von folgenden, natürlich stark vereinfachenden Annahmen aus:

- 1) Fester Wasserstoff kann als Debye-Kristall mit sphärischer Symmetrie und einem Molekül pro Einheitszelle beschrieben werden.
- 2) Die Rotation der Moleküle ist frei und nicht mit dem Phononenspektrum gekoppelt.
- 3) Das Phononenspektrum ist harmonisch und isotrop.
- 4) Die inneren Nullpunktschwingungen der Moleküle können vernachlässigt werden.
- 5) Für den Gesamtquerschnitt ohne Rotationsanregung kann pauschal der Wert für das einzelne, im Schwerpunkt fixierte Molekül verwendet werden.

Multipliziert man die Ausdrücke für die Rotationsanregung mit den Ausdrücken für die Streuung am Kristall, was unter den angegebenen Voraussetzungen vollständiger Unabhängigkeit zulässig ist, dann erhält man für den Teilquerschnitt mit Rotationsanregung, aber ohne Phononenanregung,

$$\sigma_{01,0} = (128/3) (\pi/k_0^2) a_{\text{Hi}}^2 \int_{k_0-k}^{k_0+k} q \exp(-\gamma(q^2 - 2n E_{01})) j_1^2(qr_0/2) dq.$$

Für den Querschnitt mit gleichzeitiger Anregung eines Phonons erhält man

$$\sigma_{01,1} = (128/3) (\pi/k_0^2) a_{\text{Hi}}^2 (3/2m\theta^3) \hbar^2 \int_{\omega=0}^{\theta} \left\{ \int_{k_0-k(\omega)}^{k_0+k(\omega)} q (q^2 - 2n E_{01})^* \right. \\ \left. * \exp(-\gamma(q^2 - 2n E_{01})) j_1^2(qr_0/2) dq \right\} \frac{\omega}{1 - \exp(-\omega/T)} d\omega.$$

$$k(\omega) = (k_0^2 - 2n(E_{01} + \omega))^{1/2}.$$

Der Teilquerschnitt ohne Rotationsanregung lautet /11/

$$\sigma_{00} = (128/9) (\pi/k_0^2) a_{\text{Hk}}^2 \int_0^{2k_0} q j_0^2(qr_0/2) dq.$$

Symbole:

Θ Debyetemperatur

ω Phononenenergie

T Probentemperatur (in Einheiten von kT)

E_{01} Energie des Rotationsüberganges

$\gamma = 0,155 \text{ \AA}^{-2}$, Quadrat der mittleren Auslenkung der Moleküle

k_0 Wellenzahl der einfallenden Neutronen im Laborsystem (= Schwerpunktsystem)

Der bekannte Ausdruck für den Debye-Waller-Faktor lautet $\exp(-\gamma q^2)$. Die Ergänzung, die in den Ausdrücken im Debye-Waller-Faktor und, analog, in dem Ausdruck für die 1-Phononenstreuung vorgenommen wurde, ergibt sich aus einer Betrachtung der Energieerhaltung.

Unter den angeführten Bedingungen völliger Isotropie von Kristall und Streuung (Inkohärenz, Isotropie von Kristall und Phononenspektrum), kann der Debye-Waller-Faktor umgeformt werden zu

$$\exp(-\gamma q^2) = \exp(-E_r/E_K).$$

E_r bezeichnet jetzt den maximal möglichen Energieübertrag auf den Kristall, nämlich $(q^2/2m)$. E_K ist eine von der Debyetemperatur und der Probentemperatur abhängige Kenngröße des Kristalls mit der Dimension einer Energie.

In dieser Schreibweise besagt der Debye-Waller-Faktor, daß bei einem möglichen Energieübertrag von $q^2/2m$ auf den Kristall noch ein Bruchteil $\exp(-E_r/E_K)$ der Streuvorgänge ohne Energieübertrag, also elastisch in bezug auf das Phononenspektrum, verläuft. Damit steht implizit fest, daß der Bruchteil $(1-\exp(-E_r/E_K))$ der Streuvorgänge in bezug auf das Phononenspektrum inelastisch verlaufen muß. Eine Entwicklung des letzteren Ausdruckes ergibt den Bruchteil der Streuvorgänge mit Anregung eines Phonons, nämlich $(E_r/E_K)\exp(-E_r/E_K)$. Streuung mit Phononenabsorption wird wegen der niedrigen Probentemperaturen vernachlässigt.

Auf der anderen Seite werden hier aber nur Streuvorgänge betrachtet, die immer mit der Anregung des Rotationsüberganges von $J=0$ nach $J'=1$ verbunden sind. Die hierzu notwendige Energie E_{01} muß aus dem Vorrat der

maximal übertragbaren Energie $q^2/2m$ aufgebracht werden. Damit kann aber immer nur ein Energieübertrag von maximal $(q^2/2m - E_{01})$ die Form von Phononen annehmen. Der Bruchteil der Streuungen, die in bezug auf das Phononenspektrum elastisch verlaufen, muß dann 1 sein, wenn die Neutronenenergie gerade zur Anregung des Rotationsüberganges ausreicht, also wenn $q^2/2m$ gleich E_{01} ist.

Diese Forderung ist erfüllt, wenn der Debye-Waller-Faktor, der diesen Bruchteil angibt, in der oben durchgeführten Art ergänzt wird.

Entsprechend muß der Bruchteil der Streuungen mit gleichzeitiger Anregung eines Phonons gerade 0 sein, wenn die Neutronenenergie gerade zur Anregung des Rotationsüberganges ausreicht. Damit ergibt sich die entsprechende Ergänzung des Ausdruckes für die 1-Phononenstreuung. Die bekannten Ausdrücke seien noch einmal ihren ergänzten Formen gegenübergestellt:

$$\begin{array}{lll} \exp(-\gamma(q^2)) & \text{geht über in} & \exp(-\gamma(q^2 - 2n E_{01})) \\ q^2 \exp(-\gamma(q^2)) & \text{geht über in} & (q^2 - 2n E_{01}) \exp(-\gamma(q^2 - 2n E_{01})). \end{array}$$

Mit dem Wert für die Debyetemperatur $\theta = 105 \text{ }^\circ\text{K} / 22/$ und dem Wert für die mittlere Auslenkung der Moleküle im Debye-Modell, der sich aus der Debyetemperatur zu $\gamma=0,155 \text{ \AA}^{-2}$ errechnet, wurden die angegebenen Ausdrücke mit einer Rechenmaschine ausgewertet und zu dem in Abbildung 7 eingezeichneten Streuquerschnitt für festen para-Wasserstoff addiert.

53. Vergleich der Meßergebnisse und Rechnungen

Die Ergebnisse der für hypothetische, ideale Gase von para- H_2 , normal- H_2 , D_2 und HD durchgeführten Rechnungen sind in Abbildung 3 und im Ausschnitt in Abbildung 7 eingetragen. Die Temperaturen entsprachen denen der flüssigen Proben. Der Parameter "effektive Masse" wurde zu zwei Molekülmassen angenommen. Die quantitative Übereinstimmung ist bei dieser Wahl des Parameters nicht zu schlecht, die Abweichungen bleiben unter 20 %. Der allgemeine Verlauf der Gesamtquerschnitte wird darüberhinaus vollkommen richtig wiedergegeben. Eine exaktere Behandlung der Wirkungsquerschnitte

mit einem realistischeren Rechenansatz wäre jedoch eventuell in der Lage, weitere Aufschlüsse über Struktur und Dynamik des flüssigen Wasserstoffes zu liefern.

Die Ergebnisse der Rechnung für festen para-Wasserstoff zeigen bis etwa 22 meV eine gute quantitative Übereinstimmung mit den Meßergebnissen. Die Abweichungen bleiben wieder unter 20 %. Der allgemeine Verlauf des Streuquerschnittes wird vollkommen richtig wiedergegeben, vor allem auch Lage und Form des Wendepunktes (Abbildung 7). Erst bei Neutronenenergien von mehr als 22 meV versagt die Rechnung, da die Mehrphononenstreuung nicht berücksichtigt wurde. Die vorgeschlagene Interpretation des allgemeinen Verlaufes und besonders des Wendepunktes des Streuquerschnittes von para-Wasserstoff kann also wohl als zutreffend angesehen werden, besonders, da die Rechnung ohne jede Anpassung durch Veränderung von Parametern durchgeführt wurde.

Messungen der differentiellen Streuquerschnitte von festem para-H₂ im Bereich der ersten Rotationsanregung sollten also Aufschluß über das Frequenzspektrum geben. Eine genaue Untersuchung der sicherlich vorhandenen, wenn auch schwachen, Kopplung der Rotation mit dem Frequenzspektrum könnte von allgemeinem Interesse für die theoretische Behandlung derartiger Doppelanregungen sein.

Herrn Dr. Walter Kley und Herrn Dr. Rolf Misenta danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für viele hilfreiche Hinweise und Diskussionen. Herrn Bernd Weckermann danke ich für seine wertvolle Hilfe beim Aufbau der Meßeinrichtungen. Herrn Dr. Rudolf Haas möchte ich für die Erstellung des Programmes zur Berechnung der theoretischen Streuquerschnitte danken.

Die EURATOM-Organisation ermöglichte großzügigerweise die Durchführung der Untersuchungen im Kernforschungszentrum ISPRA.

Literatur

- /1/ L.W. Alsvarez, K.S. Pitzer
Phys. Rev. 58, 1003, 1960
- /2/ J. Halpern, I. Estermann, O.L. Simpson, O. Stern
Phys. Rev. 52, 142, 1937
- /3/ F.G. Brickwedde, J.R. Dunning, H.J. Hoge, H.J. Manley
Phys. Rev. 54, 266, 1938
- /4/ R.B. Sutton et. al.
Phys. Rev. 72, 1147, 1947
- /5/ G.L. Squire, A.T. Stewart
Proc. Roy. Soc. 230 A, 19, 1955
- /6/ A.W. McReynolds, W.L. Whittemore
IAEA Vienna 1963, p. 263
- /7/ S.J. Nikitin et. al.
PCIG Vol II, 81, 1955
- /8/ A.A. Anselm
JETP 6 (33) Nr 3, 480, 1958
- /9/ A. Farkas
Orthohydrogen, Parahydrogen and Heavy Hydrogen
Cambridge University Press New York 1935
- /10/ C.G. Shull, E.O. Wollan, G.A. Morton, W.L. Davidson
Phys. Rev. 73, 842, 1948
- /11/ J. Schwinger, E. Teller
Phys. Rev. 52, 286, 1937
- /12/ J.A. Young, J.U. Koppel
Phys. Rev. 135 Nr 3A, 603, 1964
- /13/ M. Hammermesh, J. Schwinger
Phys. Rev. 69, 145, 1946
- /14/ G. Sarma
IAEA Proc. Vienna 1961, p. 397
- /15/ S. Brimberg
Proc. Int. Conf. Peacefull Uses of At. Energy
Geneva 1958, Vol 15, p. 79

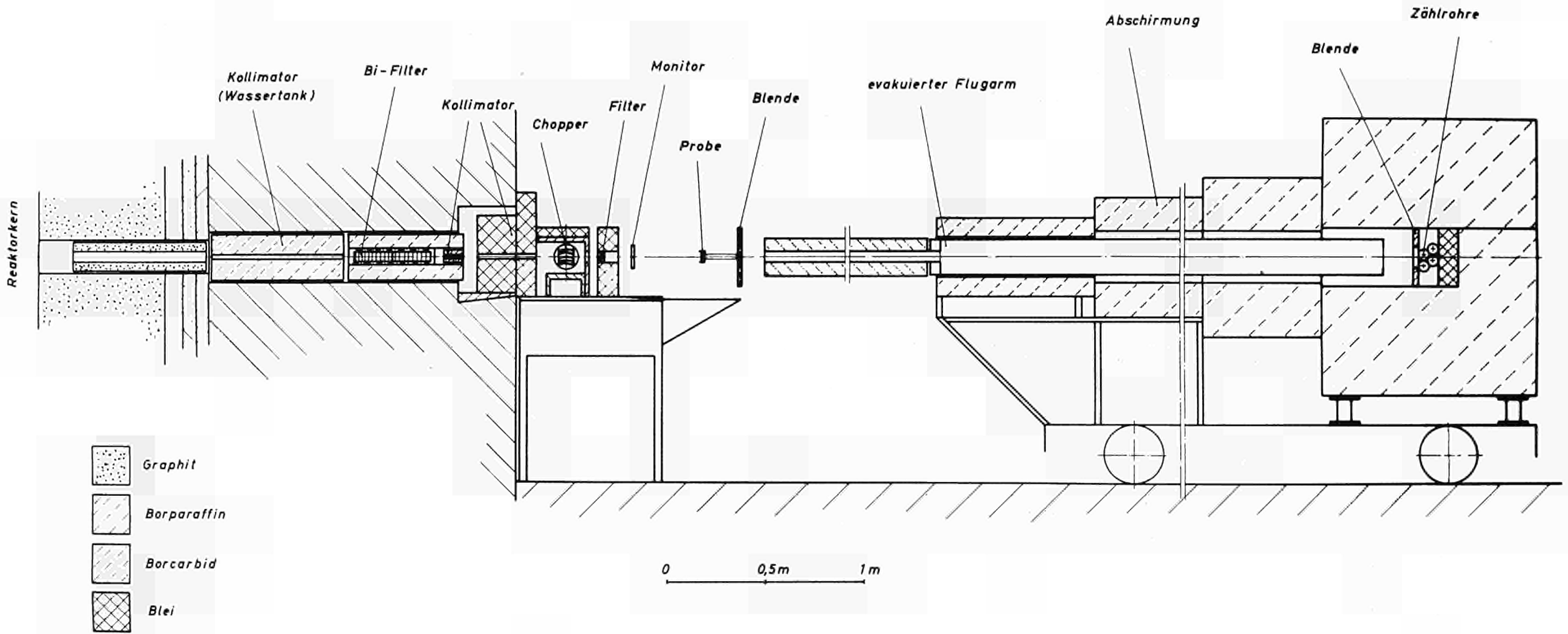
- /16/ S. Menardi, R. Haas, W. Kley
EURATOM int. Rep. ISPRA - 257, 1962
- /17/ A. Fookson, P. Pomerantz, E.H. Rich
Science 112, 748, 1950
- /18/ H.W. Woolley, R.B. Scott, F.G. Brickwedde
J. Res. of the NBS, 41, 379, 1948
- /19/ V.S. Kogan et. al.
Sov. Phys. Crist. 6, 507, 1962
- /20/ S.J. Talhouk, P.M. Harris, D. White
J. Chem. Phys. 48 Nr 3, 1273, 1968
- /21/ Weinberg-Wigner
The Physical Theorie of Neutron Chain Reactors
pp. 77, 78 1958
- /22/ G. Bartolomé
Zeit. f. Chemie 33, 387, 1936

Tabelle 3 Wirkungsquerschnitte von flüssigem normal-
Wasserstoff (16 °K), para-Wasserstoff (14 °K),
Deuterium (19 °K) und Deuteriumhydrid (17 °K).

Energie (meV)	D ₂ (barn)	p-H ₂ (barn)	n-H ₂ (barn)	HD (barn)
78,2	7,1		54,9	31,1
74,6	7,4		54,2	29,0
71,2	6,6		55,5	28,2
68,1	6,9		55,3	27,9
65,2	7,1		55,7	28,8
59,9	7,7	49,9	55,9	28,4
55,2	7,8	45,8	55,4	30,1
49,1	7,0	45,3	56,6	27,9
44,0	7,0	40,0	55,5	26,8
39,6	7,6	39,1	56,3	25,1
35,9	7,8	33,6	57,6	26,2
33,7	8,0	31,8	55,9	27,0
31,7	8,2	30,2	55,6	27,2
29,8	8,2	28,2	57,1	25,2
28,2	8,3	25,7	56,1	27,5
25,9	8,4	22,6	57,5	27,3
23,9	8,6	19,9	59,0	27,8
22,1	9,1	16,9	59,6	27,1
20,0	9,4	13,8	59,6	27,5
19,1	9,2	12,5	60,4	27,6
18,2	9,8	10,7	61,3	26,4
17,0	9,9	8,8	61,4	26,3
15,9	9,7	6,9	62,1	26,3
15,0	10,3	5,0	63,6	26,7
14,1	10,5	4,0	64,5	26,0
13,0	10,5	3,6	65,0	25,2
12,0	10,8	3,5	67,0	26,1
11,0	11,3	3,6	69,2	26,1
10,1	11,0	3,6	70,9	25,8
9,6	11,2	3,6	72,0	26,4
9,0	11,3	3,7	73,6	27,1
8,6	11,8	3,8	75,0	28,8
8,0	11,3	3,8	75,3	28,8
7,5	11,6	3,9	76,8	29,5
7,0	11,6	3,9	78,8	29,1

Energie (meV)	D ₂ (barn)	p-H ₂ (barn)	n-H ₂ (barn)	HD (barn)
6,5	12,0	4,0	80,5	31,3
6,0	12,0	4,1	82,4	33,2
5,5	12,5	4,2	84,8	33,7
5,0	12,5	4,4	87,9	34,1
4,8	12,5	4,5	89,5	35,8
4,6	13,0	4,5	89,6	36,5
4,4	12,7	4,5	91,1	36,2
4,2	13,5	4,6	91,9	37,2
4,0	13,1	4,7	93,9	38,5
3,8	13,8	4,7	95,7	40,1
3,6	13,6	4,8	96,7	39,7
3,4	13,6	4,9	98,4	40,3
3,2	13,1	4,9	100,1	38,8
3,0	13,2	4,9	103,0	42,4
2,9	13,1	4,9	103,4	42,1
2,8	12,4	5,0	105,8	43,7
2,7	12,7	5,0	106,5	43,5
2,6	11,7	4,8	107,0	45,0
2,5	11,5	4,9	107,7	43,3
2,4	11,4	4,8	109,4	45,3
2,3	9,7	4,7	111,6	45,8
2,2	9,6	4,6	113,0	46,4
2,1	8,6	4,4	112,5	46,2
2,0	7,3	4,4	113,2	49,4
1,9	6,4	4,3	119,4	48,2
1,8	6,5	4,0	122,8	49,5
1,7	5,8	4,3	119,0	49,3
1,6	6,0	4,1	123,6	53,0
1,5	6,2	3,8	127,7	50,9
1,4	5,8	4,2	128,0	50,0
1,3	5,2	4,1	132,9	52,8
1,2	5,3	4,4	129,5	51,2
1,1	5,6	4,6	134,7	55,7
1,0	5,3	4,2	139,9	60,8
0,9	5,4	4,6	143,3	54,4

Abbildung 1 Das Flugzeitspektrometer



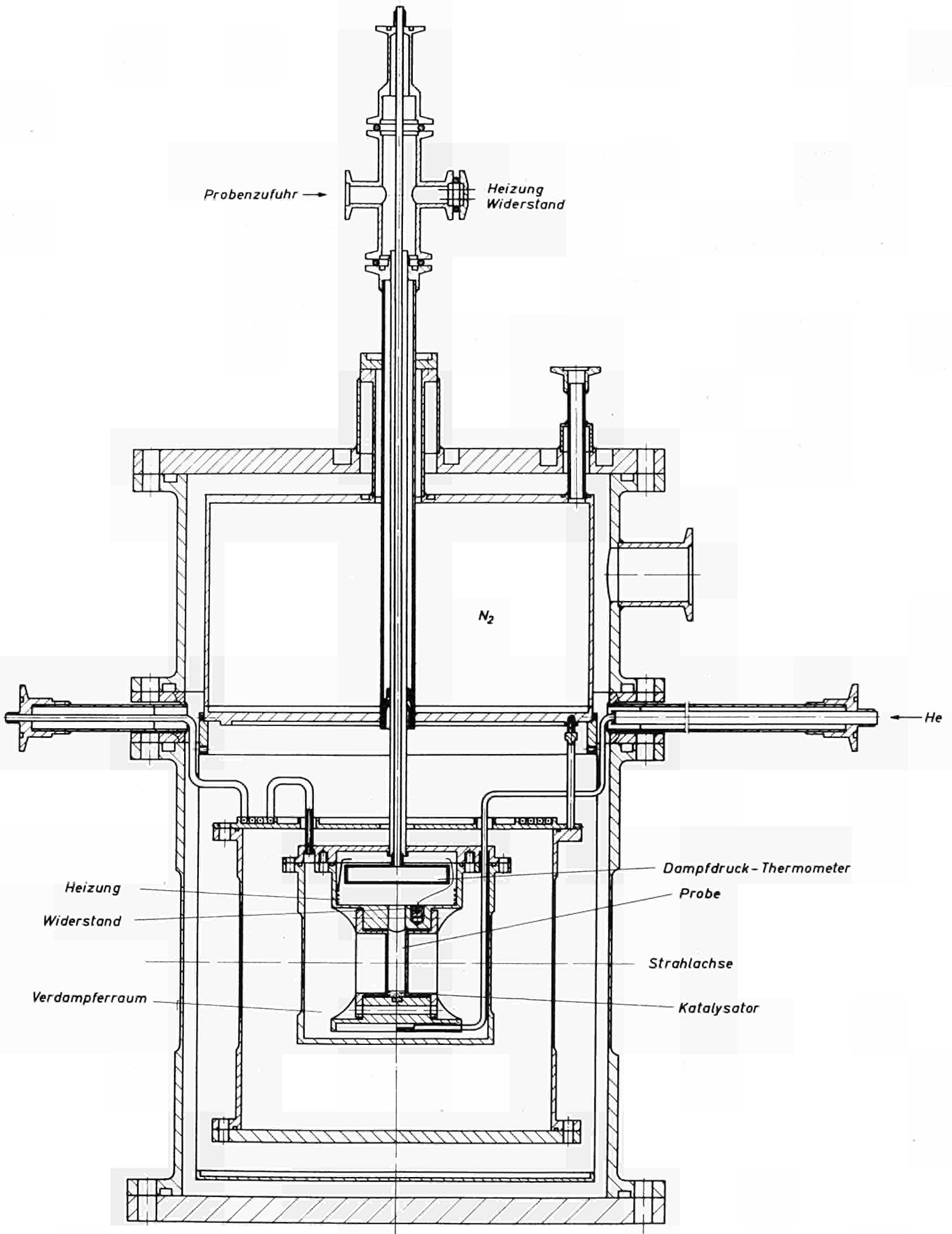


Abbildung 2 **Der Kryostat**

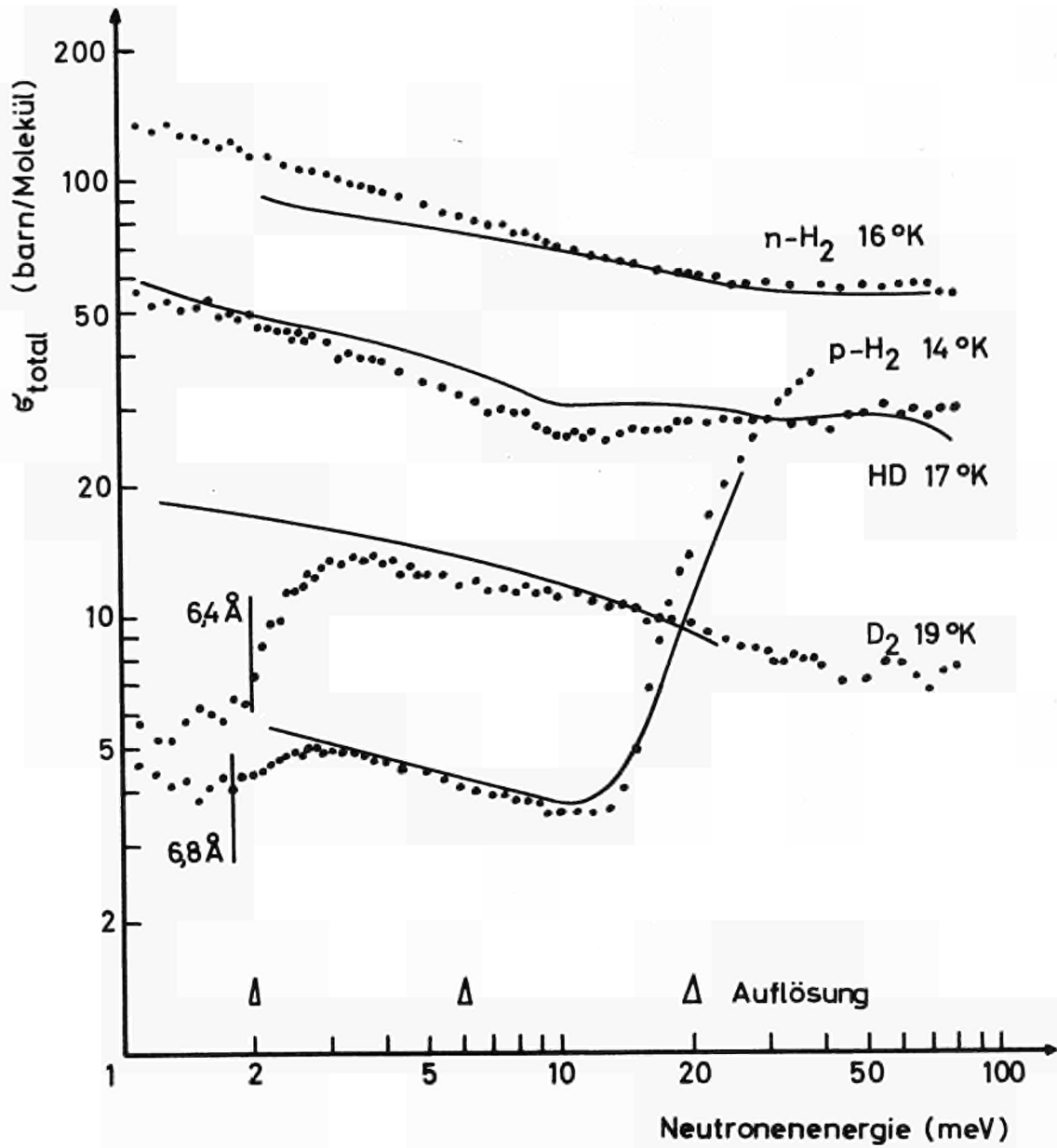


Abbildung 3

Totale Wirkungsquerschnitte von flüssigem normal-H₂, para-H₂, HD und D₂.

Durchgehende Linien: Ergebnisse der Rechnungen.

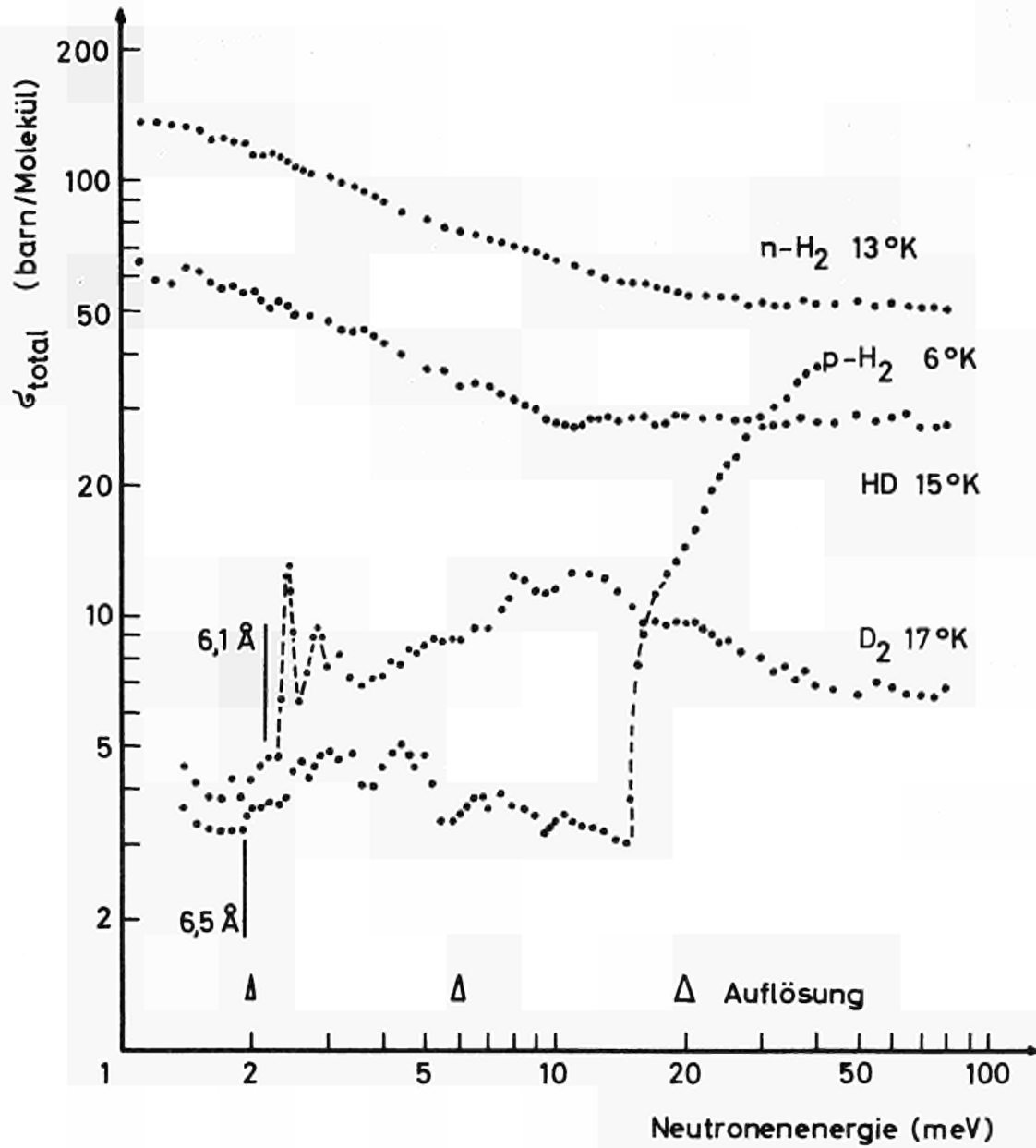


Abbildung 4

Totale Wirkungsquerschnitte von festem normal-H₂, para-H₂, HD und D₂.

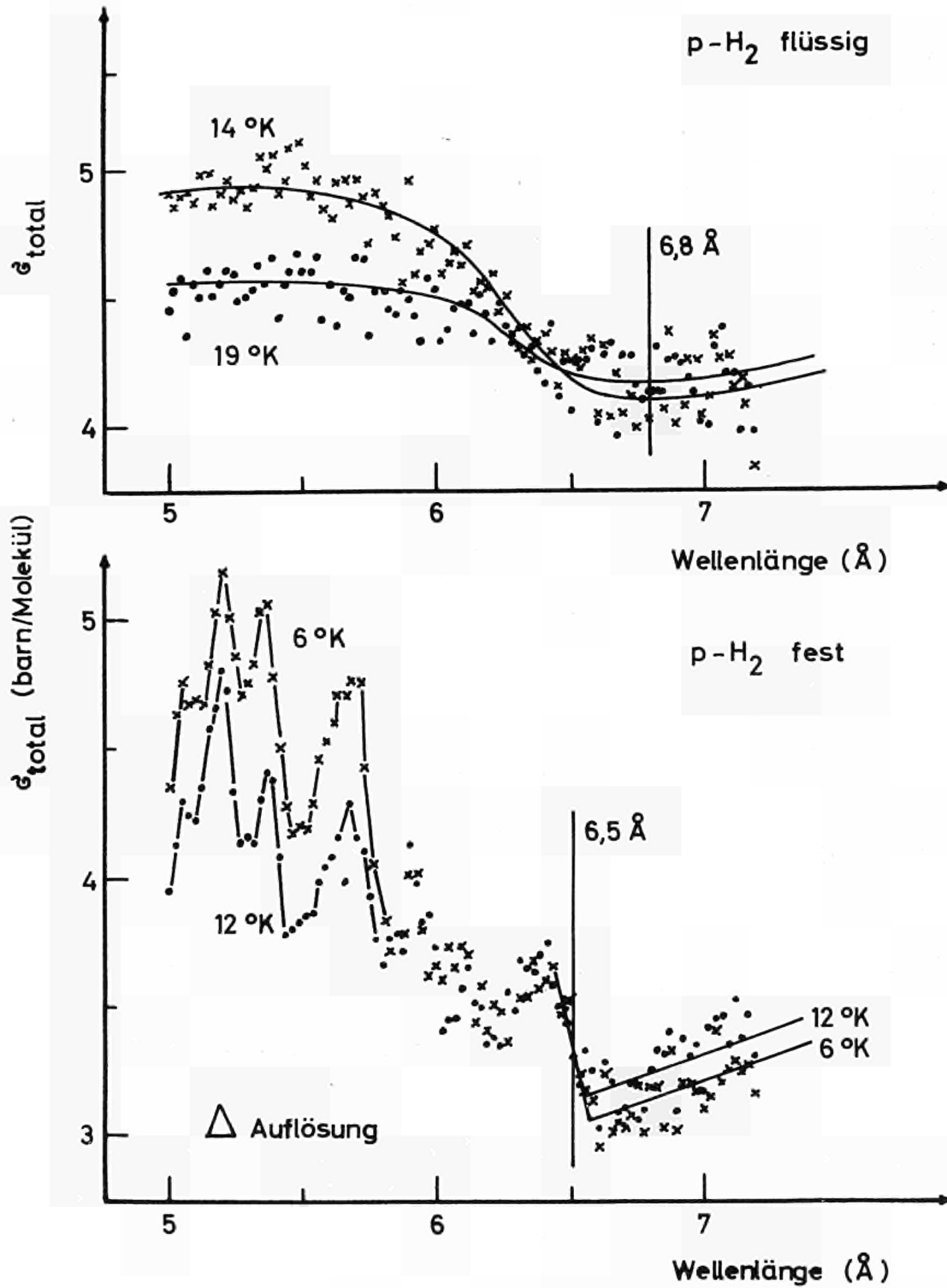


Abbildung 5

Temperaturabhängigkeit der Braggstreuung an para-H₂ im Bereich des Cut Off.

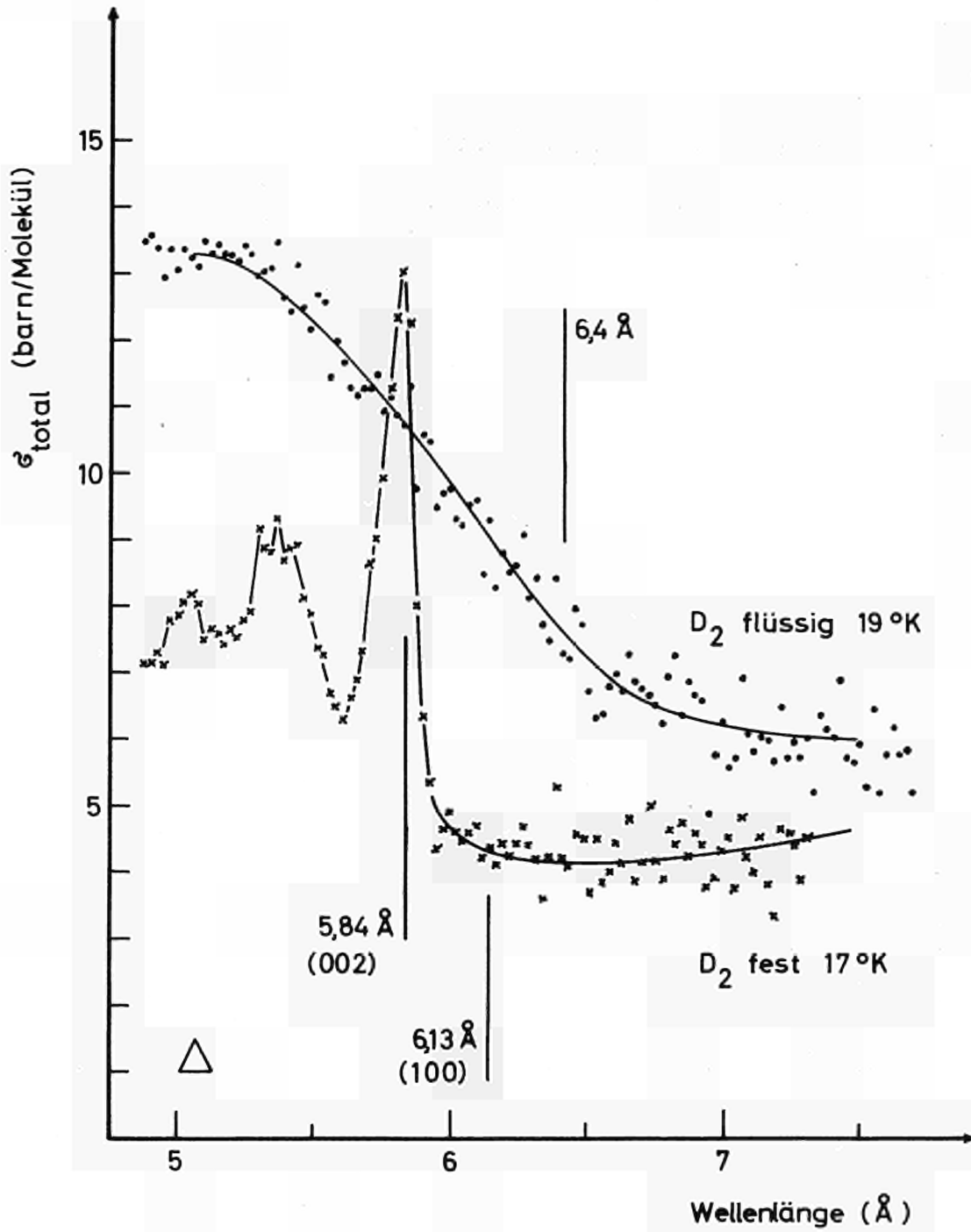


Abbildung 6

Braggstreuung an flüssigem und festem D_2 im Bereich des Cut Off.

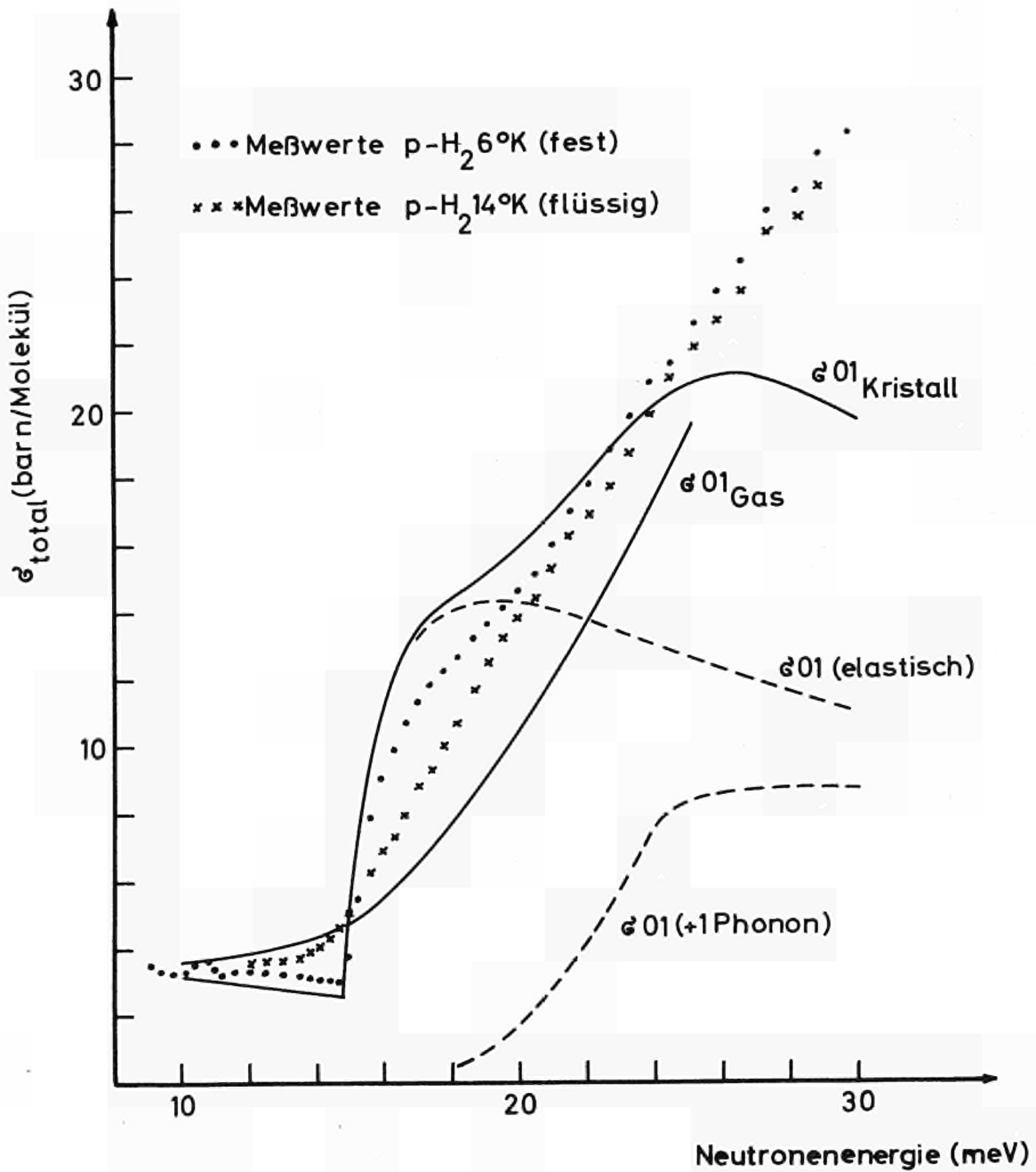


Abbildung 7

Totale Wirkungsquerschnitte von festem und flüssigem para-H₂ am Einsatzpunkt der Rotationsanregung.

Vergleich der Messungen mit den Ergebnissen der Rechnungen für ein Gas von 14 °K und für einen Debyekristall.

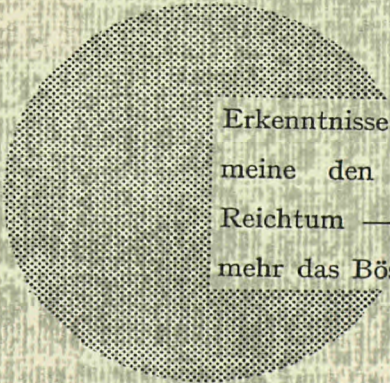
AN UNSERE LESER

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift „euro abstracts“ angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

Handelsblatt GmbH
„euro abstracts“
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf 1 (Deutschland)

oder

Office de vente des publications officielles
des Communautés européennes
37, rue Glesener
Luxembourg



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich. Bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagseite jedes Berichts stehen, deutlich angeben.

VERTRIEBSSTELLE DER AMTLICHEN VERÖFFENTLICHUNGEN DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - 1000 Bruxelles
BELGISCH STAATSBAD
Leuvenseweg 40-42 - 1000 Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE DE VENTE DES
PUBLICATIONS OFFICIELLES DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
37, rue Glesener - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - 5000 Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - 75 Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - 00198 Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P. O. Box 569 - London S.E.1

Kommission der
Europäischen Gemeinschaften
G.D. XIII - C.I.D.
29, rue Aldringer
Luxembourg

CDNA04455DEC