

Physikalisches Fortgeschrittenenpraktikum der TU München

Praktikumsversuch Inelastische Neutronenstreuung am PUMA (FRM II)

Matthias Lettner

3.10.2004



1 Organisatorisches

Die Lektüre dieser Anleitung ist Teil der Vorbereitung zum Praktikumsversuch *inelastische Neutronenstreuung*. Da eine komplette Darstellung der Vorkenntnisse, die für die Versuchsdurchführung notwendig sind, den Rahmen dieses Dokuments sprengen würde, findet zum Versuch ein spezielles Vorbereitungsseminar statt. Zu diesem Termin soll sich je eine Gruppe in ein vorher mit dem Betreuer abgesprachenes Thema einarbeiten und die für den Versuch relevanten Dinge in einem ca. 15 minütigen Vortrag für die im jeweiligen Semester teilnehmenden Studenten zusammenfassen. Genaue Aufgabenstellungen finden sich am Ende dieser Anleitung. Sie erhalten auch Literaturstellen zu den einzelnen Vorträgen. Im Zuge der Versuchsvorbereitung werden einige Konstruktionen anzufertigen sein. Bringen Sie daher zum Seminar bitte Zirkel und Geodreieck, sowie einen Taschenrechner mit. Weiterhin findet eine Führung durch den Reaktor statt und Sie erhalten die, für alle Tätigkeiten in kerntechnischen Anlagen vorgeschriebene Strahlenschutzbelehrung.

Der Zeitaufwand bei diesem Versuch ist höher als bei anderen. Vorbereitungsseminar und Durchführung sind auf je einen Tag veranschlagt. An Heimarbeit fällt zusätzlich zur Ausarbeitung die Vorbereitung eines Vortrages an. Die *inelastische Neutronenstreuung* wird daher doppelt im Vergleich zu anderen Praktikumsversuchen gewichtet. Das PUMA ist ein hochmodernes Instrument, an dem internationale Wissenschaftler im 24-Stundenbetrieb arbeiten. Das Praktikum wird in den Zeitplan integriert. Richten Sie sich daher bitte darauf ein, dass, falls es aus terminlichen Gründen erforderlich ist, der Versuch auch nachts oder am Wochenende stattfinden kann.

2 Der Versuchsaufbau

„Das PUMA“ (thermisches **D**reiachsenspektrometer mit **P**olarisationsanalyse und **M**ulti-**A**nalysator- Detektor) ist ein Vertreter der gängigsten Spektrometerform an Forschungsreaktoren. Das erste Gerät dieser Art wurde von Bertram N. Brockhouse 1954 am NRU Reaktor in Chalk River aufgebaut und 1959 noch einmal entscheidend verbessert. Brockhouse erhielt 1994 den Nobelpreis für seine Leistungen im Bereich der inelastischen Neutronenstreuung. Die Steuerparameter wurden damals noch von der zentralen Rechenanlage des Instituts, dem Datatron als Ausdruck geliefert und über Drehschalter am Instrument eingestellt. 1959 stieg man auf Lochkarten um, soweit die Geschichte. Neben einer weitgehenden Automatisierung vieler Vorgänge und der Steigerung der Intensitäten am Detektor um mehrere Zehnerpotenzen(!) hat die neuere Zeit auch erheblich verbesserte Sicherheits- und Strahlenschutzrichtlinien hervorgebracht, die Ihnen zugute kommen. Die grundsätzliche Funktionsweise ist dabei gleich geblieben:

Ein Strahl thermischer Neutronen (Energie $E \approx 30 \text{ meV}$, Impuls $p \approx 4 \cdot 10^{-24} \text{ kg m/s}$), dem nach der de Broglie Beziehung eine Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{p}, \tag{1}$$

2 Der Versuchsaufbau

Bezeichnungen:

Q	Neutronenquelle
\mathcal{M}	Monochromator
\mathcal{S}	Probentisch
\mathcal{A}	Analysator
\mathcal{D}	Detektor
α_1 α_2 α_3 α_4	Kollimatoren
$2\Theta_m$ $2\Theta_s$ $2\Theta_a$	Winkel der Spektrometer- achsen
Abs Sel Mob Sh	Abschirmburg Selektor Mobilblöcke Primärshutter

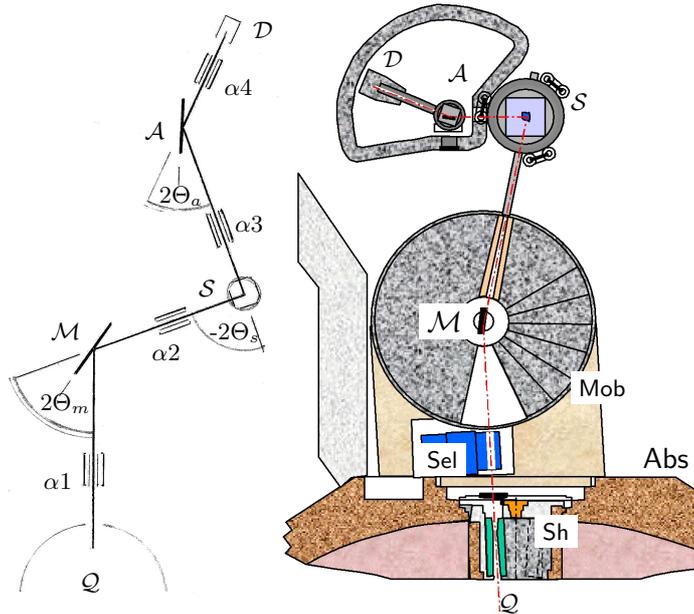


Abbildung 1: Schematischer Aufbau eines Dreiachsenspektrometers.

Anmerkung: alle Winkel werden im Bereich $[-180^\circ, 180^\circ]$ gezählt. (0° in Richtung des Strahls, positive Winkel nach rechts gemessen.) $2\Theta_s$ ist im vorliegenden Beispiel also negativ.

bzw. ein Wellenvektor der Länge $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ zugeordnet werden kann, tritt durch ein Strahlrohr aus dem Moderatorntank des Reaktors aus. Er trifft auf einen Einkristall mit Netzebenenabstand d , den Monochromator.

Der Bragg-Bedingung,

$$n\lambda = 2d \sin \Theta_m \quad (2)$$

folgend findet sich im Winkel $2\Theta_m$ ein monochromatischer Neutronenstrahl (Wellenvektor \mathbf{k}_i , Energie E_i), der auf die zu untersuchende Probe trifft.

Dort ändern sich gemäß den inelastischen Streugesetzen Richtung und Energie der Neutronen. In einem zweiten Spektrometer (Reflexion an zweitem Bragg-Kristall = Analysator) werden lediglich Neutronen mit dem Wellenvektor \mathbf{k}_f bzw. der Energie E_f zum Detektor weitergeleitet. Der Experimentator ist so in der Lage, sowohl den Impulsübertrag (\mathbf{Q}) der Neutronen an die Probe, als auch die Energiemenge, die bei inelastischen Prozessen deponiert wird (ΔE), zu bestimmen.

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f, \quad \Delta E = E_i - E_f. \quad (3)$$

2 Der Versuchsaufbau

Um vernünftige Zählstatistiken zu erhalten, wird jeweils bei einer fest eingestellten Konfiguration des Gerätes (entspricht einem bestimmten Energie- und Impulsübertrag), gemessen. Die Streufunktion der Probe wird so punktweise abgerastert. Bei solchen Scans können zum Beispiel Q oder E konstant gehalten werden, dazu später mehr.

Das PUMA ist am Strahlrohr 7 in der Experimentierhalle des FRMII aufgebaut und zeichnet sich durch einen hohen erreichbaren Neutronenfluss aus. Detaillierte Informationen zum Gerät erhalten sie auch unter:

<http://www.frm2.tum.de/puma/index.en.shtml>.

Es folgt nun eine Beschreibung der Komponenten eines Dreiachsenspektrometers. Photos der wichtigsten Bauteile finden Sie auf Seite 8.

Abschirmung Aufgrund der biologischen Wirkung von Neutronen muss der gesamte Primärstrahlbereich mit dem Monochromator in einer Abschirmburg (am PUMA gelb lackiert) untergebracht werden. Da Neutronen Kernreaktionen initiieren und damit andere Materialien aktivieren, kann die Abschirmung während des Betriebszyklus des FRMII nicht geöffnet werden. Sie können jedoch einige Einbauten auf den Photos erkennen. Die Burg soll sowohl γ -Quanten als auch Neutronen abschirmen. Sie besteht aus Schwerbeton mit hohem Kristallwasseranteil, dem ferner Bohr beigemischt ist. Ebenfalls Verwendung finden boriierte Polyethylen(PE)-platten. Kristallwasser und PE enthalten große Mengen Wasserstoff und eignen sich gut zum Abbremsen schneller Neutronen. Bohr besitzt einen hohen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen¹ und das bei Neutroneneinfang entstehende Isotop ist nicht radioaktiv.

Bei der Bewegung der Monochromatorachse wird ein Ring der Abschirmung mitgedreht, der eine Aussparung, den Strahlkanal, enthält. Hier tritt der am Monochromator gebeugte Strahl aus. Um bei fortgesetzter Drehung nicht irgendwann den Primärstrahl zu verdecken, werden 5 sog. Mobilblöcke aus Schwerbeton über eine automatische Steuerung jeweils so versetzt, dass gerade die Öffnung für den Primärstrahl bleibt, alle anderen Richtungen aber abgeschirmt sind (siehe Abb.1).

Monochromator Im Zentrum der Abschirmburg sitzt der Monochromator. Er besteht aus einem Aluminiumrahmen, auf dem mehrere Einkristalle montiert sind, die in einem Winkel Θ_m gegen den Primärstrahl verdreht werden. Die Intensität des im Winkel $2\Theta_m$ ² ausgekoppelten, monochromatisierten Strahls hängt vom verwendeten Material aber auch vom Einfallswinkel ab. Um einen großen Wellenlängenbereich bedienen zu können stehen am PUMA vier verschiedene Monochromatoren zur Verfügung, die über einen automatischen Wechsler ausgetauscht werden. Zur Anwendung kommen Kupfer (Cu[111], Cu[220]), Pyrolythischer Graphit (PG[002]) und Silizium (Si[331]). In eckigen Klammern sind dabei die Miller-Indizes der jeweils reflektierenden Netzebenen angegeben. Die genaue Ausrichtung der Rahmen geschieht durch ein Goniometer (siehe unten).

¹Typische Reaktion: ${}^1_0\text{n} + {}^{10}_5\text{B} \rightarrow {}^7_3\text{Li} + {}^4_2\text{He} + 2.8\text{Mev}$

²Achtung: Manchmal werden Θ_m , Θ_s und Θ_a auch mit α_1 bis α_3 bezeichnet.

2 Der Versuchsaufbau

Um Braggreflexe höherer Ordnung auszuschalten, $n = 2, 3 \dots$ (Gl. (2)), kann ein mechanischer Selektor vor dem Monochromator in den Strahl gefahren werden. Er besteht aus geschlitzten Scheiben, die auf einer Achse parallel zum Primärstrahl rotieren und nur von Neutronen eines bestimmten Geschwindigkeitsbereiches passiert werden können. Dieses Verfahren ist durch die erreichbaren Drehgeschwindigkeiten begrenzt. Für höhere Energien kommen Filter zum Einsatz.

Wie an den meisten modernen Spektrometern besteht auch am PUMA die Möglichkeit einer fokussierenden Messung, d.h. der Monochromator kann in horizontaler und vertikaler Richtung gekrümmt werden, um, wie ein Hohlspiegel, den Neutronenstrahl auf die Probe zu bündeln. Bei geschickter Wahl der beteiligten Abstände kann so auch eine Fokussierung der Impulse erreicht werden. Technisch wird die Krümmung im Falle von Si über ein direktes Verbiegen der Kristalle erreicht. Bei den anderen Monochromatoren werden über 100 kleine Einkristallplättchen so gedreht, dass ihre Oberflächen ein Paraboloid annähern.

Von außen ist an der Abschirmburg nur der Strahlkanalausgang zu erkennen. An ihm ist der Probenstisch in variablem Abstand montiert.

Probenstisch Die Probe befindet sich auf dem auf Luftfüßen frei beweglichen Probenstisch. Er kann mit verschiedenen Goniometern bzw. einer Eulerwiege bestückt werden. Auch sind diverse Probenumgebungen zum Einstellen von Druck und Temperatur vorhanden. Auf der Achse des Probenstisches kann sowohl die Probe, als auch der Flansch, an dem sich das Sekundärspektrometer befindet, gedreht werden. Der Winkel zwischen einfallendem und ausfallendem Strahl ist dabei $2\Theta_s$.

Analysator Der Analysator befindet sich ebenfalls unter einer Abschirmung. Diesmal nicht zum Schutz der Umgebung, sondern, um den Untergrund am Detektor zu minimieren. Hinter der Eintrittsöffnung befindet sich wieder ein mit mehreren Einkristallen bestückter Rahmen, der eine fixe Vertikal- und variable Horizontalkrümmung aufweist. Wie am Monochromator stehen auch für den Analysator verschiedene Materialien zur Verfügung (PG[002], Si[331]). Der Rahmen steht im Winkel Θ_a zum Strahl, der Detektor ist um $2\Theta_a$ gedreht. Auch hier muss man sich über die Winkelabhängigkeit der reflektierten Intensität im Klaren sein.

Detektor Der Detektor besteht aus einem Ensemble von Zählrohren, die mit ^3He unter hohem Druck (ca 5 bar) gefüllt sind. Ein Neutron kann von einem ^3He -Kern eingefangen werden und zu ^4He umwandeln. Dabei wird ein γ -Quant frei, welches das Gas ionisiert und wie in einem gewöhnlichen Geiger-Müller-Zählrohr nachgewiesen wird. Es wird dabei nicht unterschieden, in *welchem* Zählrohr ein Signal aufgetreten ist. Auf diese Weise werden ca. 80% aller einfallenden Neutronen erfasst.

Blenden, Kollimatoren und Abschwächer Neben den bisher beschriebenen Komponenten befinden sich noch verschiedene Bauteile im Strahlengang, die vor allem der Begrenzung des Strahles dienen. So existieren am Ausgang des Strahlkanals zwei variable Blenden,

2 Der Versuchsaufbau

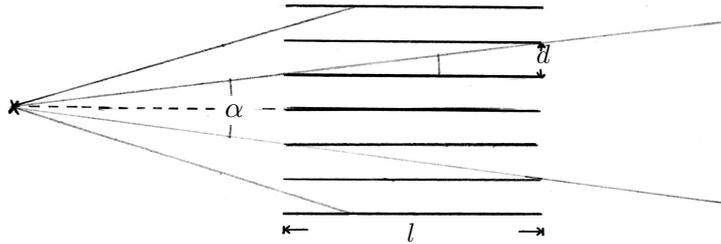


Abbildung 2: Schematische Darstellung eines Soller-Kollimators. Die Divergenz des austretenden Strahles ergibt sich zu $\alpha = 2 \tan(d/l)$, in diesem Beispiel ca. 18° . Am PUMA liegen die Kollimationen im Minutenbereich.

die den Strahl genau auf die Größe der Probe zuschneiden. Dort kann der Stahl mit einem Sekundärshutter auch vollständig unterbrochen werden. Weitere Blenden befinden sich zusammen mit dem Primärshutter in der Abschirmwand des Reaktorbeckens und zwischen Monochromator und Strahlkanal.

Darüber hinaus gibt es in jedem Teil des Strahlenganges sogenannte Soller-Kollimatoren. Diese bestehen aus ca. 20 cm langen, mit GdO_2 beschichteten Folien, die exakt parallel ausgerichtet sind und so die Divergenz des Strahls begrenzen. Das Ausmaß dieser Begrenzungen wird durch den Winkel α beschrieben (siehe Abb. 2). Es sind Kollimatoren mit $\alpha = 10'$ bis $\alpha = 60'$ wählbar. Dabei gilt: Geringe Strahldivergenz korrespondiert mit hoher Auflösung aber geringer Intensität. Die Primär- und Sekundärkollimatoren sind in die Abschirmung integriert und werden automatisiert gewechselt, während dies im Sekundärspektrometer von Hand vorgenommen wird. Grundsätzlich engen wir den Strahl zur Verbesserung der Auflösung nur horizontal, d.h. in der Streuebene ein. Die vertikale Auflösung ist für uns nicht relevant. Um möglichst hohe Intensitäten zur Verfügung zu haben, werden senkrecht zur Streuebene große Strahldivergenzen zugelassen.

Gelegentlich, z.B. zu Justagezwecken, steht der Detektor direkt im Strahl. Um dabei eine Sättigung der Zählrohre zu vermeiden, existieren im Primärstrahlbereich PE-Platten unterschiedlicher Stärke, die zur Abschwächung in den Strahl gefahren werden können.

Monitor Da bei einer Messung nicht die absoluten Zählraten sondern nur die relativen Intensitäten, bezogen auf den auf die Probe einfallenden Strahl von Interesse sind, befindet sich im monochromatisierten Strahl ein Monitor-detektor, dessen Signal proportional zur einfallenden Intensität ist. So ist es möglich, das Detektorsignal zu reskalieren und die Messung unabhängig von der Intensität einfallenden Strahls, die u.a. mit $2\Theta_m$ oder Schwankungen in der Reaktorleistung variiert, zu machen (siehe Abschnitt 3.9).

Goniometer Monochromator, Analysator und Probe befinden sich auf sog. 2-Achsen-Goniometern. Sie ermöglichen Kippungen um zwei zueinander senkrechte Achsen, die sich im Zentrum des Strahls schneiden. Dadurch wird der Kristall nicht aus dem Strahl herausgedreht. Die erreichbaren Winkel sind allerdings begrenzt ($\pm 15^\circ$), die Probe muss

2 Der Versuchsaufbau

also bereits vorjustiert sein³. Die Goniometer befinden sich zudem auf Translationstischen, um Verschiebungen ins Zentrum der vertikalen Drehachsen zu kontrollieren.

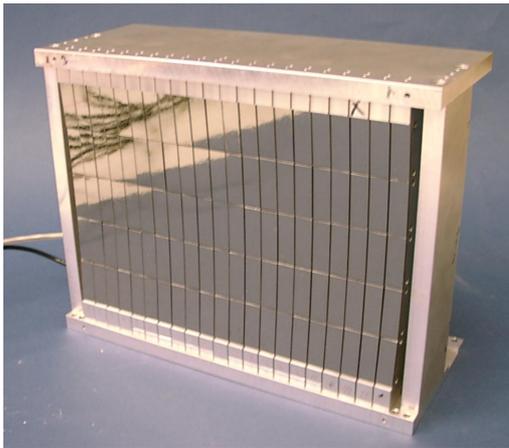
Um eventuelle Unklarheiten, die die Anordnung und Funktionsweise der Komponenten betreffen, zu beseitigen, wenden Sie sich am besten während der Führung an Ihren Betreuer, da die Fragen dann gleich vor Ort erläutert werden können. Die genaue Planung der Scans, der verwendeten Kollimationen sowie Auswirkungen auf die Messgenauigkeit sind Gegenstand des Vorbereitungsseminars.

³Diese Einschränkung umgeht man durch die Verwendung einer sogenannten Eulerwiege, die Rotationen in alle Raumrichtungen zulässt.

Erste Seite: *Gesamtansicht des PUMA mit dem Reaktorbecken im Hintergrund. Deutlich zu erkennen sind der Monochromatorwechsler in der noch offenen Burg, sowie Ein- und Austrittsöffnungen für den Strahl in den Abschirmungen. Auf dem Probenstisch befindet sich eine Tieftemperaturprobenumgebung, mit der Temperaturen von bis zu 3K eingestellt werden können.*

Abbildung 3: (Folgende Seite) *Komponenten des PUMA aufgenommen in verschiedenen Aufbaustadien*

2 Der Versuchsaufbau



(a) PG-Analysator. Durch Drehung der Segmente wird die horizontale Krümmung variiert.



(b) Si-Monochromator. Zur Fokussierung werden die Waver direkt gebogen.



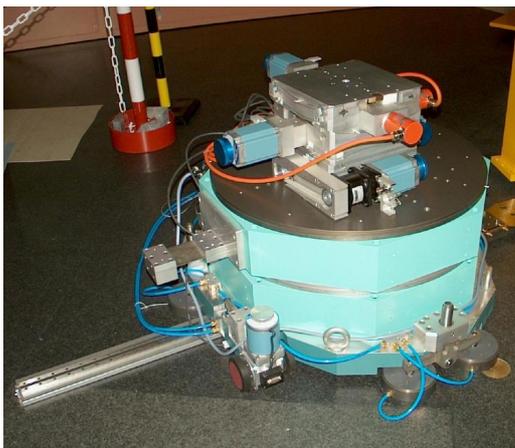
(c) 2-Achsen Goniometer



(d) Soller Kollimator



(e) Detektor bestehend aus 5 ^3He -Zählrohren



(f) Probentisch



(g) Blick in das Sekundärspektrometer (ohne Kristall). Der Detektor befindet sich unter der grauen Abschirmung

3 Theoretische Grundlagen

Diese Zusammenfassung dient als Wiederholung der speziell für den Versuch relevanten Theorie. Dabei wird davon ausgegangen, dass der Stoff bereits Teil der Vorlesung „Einführung in die Festkörperphysik“ war. Als bekannt vorausgesetzt werden weiterhin Kenntnisse über verschiedene Typen von Kristallgittern, die Begriffe *Einheitszelle* und *Basis* sowie der Umgang mit *Miller'schen Indizes*.

Falls Ihnen die angesprochenen Dinge zum ersten Mal begegnen, sollten Sie auf jeden Fall einen Blick in ein gängiges Lehrbuch der Festkörperphysik riskieren, um ein grundlegendes Verständnis zu erwerben. Literaturangaben in den einzelnen Abschnitten erleichtern Ihnen die Recherchearbeit.

3.1 Inelastischer Streuquerschnitt

Die Versuchsanordnung sieht vor, dass ein *monoenergetischer* (Energie E_i) Neutronenstrahl aus einer bestimmten *Richtung* (Wellenvektor \mathbf{k}_i) auf eine Probe einfällt. Das Verhältnis der Intensität des in einen gewissen Raumwinkel $d\Omega$ (Wellenvektor \mathbf{k}_f) gebeugten Strahls, der die Energie $E_f + dE$ besitzt, zur Intensität des einfallenden Strahls ist der differentielle Streuquerschnitt

$$\frac{I_{\Omega, E_f}}{I_0} = \frac{d\sigma^2}{d\Omega dE_f}. \quad (4)$$

Die Streuung der Neutronen an Kernen wird im Rahmen der Quantenmechanik als kleine Störung des ursprünglichen Systems behandelt. Unter dem Schlagwort „Fermis goldene Regel“ ist die entsprechende Herleitung beim Nachlesen in einem Standardwerk zu finden.

Literatur: [8]

Im Allgemeinen lässt sich zeigen, dass der Streuquerschnitt folgendermaßen gegeben ist:

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega dE_f} = \frac{|\mathbf{k}_f|}{|\mathbf{k}_i|} S(\mathbf{Q}, \omega). \quad (5)$$

Die Streufunktion S hängt vom Impulsübertrag⁴ $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$ und dem Energieübertrag, ausgedrückt in einer Wellenlängenänderung $\omega = \frac{E}{\hbar}$ ab. Da zwischen ω bzw. E und $|\mathbf{k}_f|$ ein quadratischer Zusammenhang besteht, gilt für den in der weiteren Rechnung in 3.9 verwendeten Querschnitt:

$$\frac{d^3\sigma}{d\mathbf{k}_{fx} d\mathbf{k}_{fy} d\mathbf{k}_{fz}} \propto \frac{1}{|\mathbf{k}_i|} S(\mathbf{Q}, \omega). \quad (6)$$

Literatur: vgl.[12], Kap.4

⁴Eigentlich: Änderung des Wellenvektors. In Einheiten von \hbar ist dies jedoch genau der Impulsübertrag.

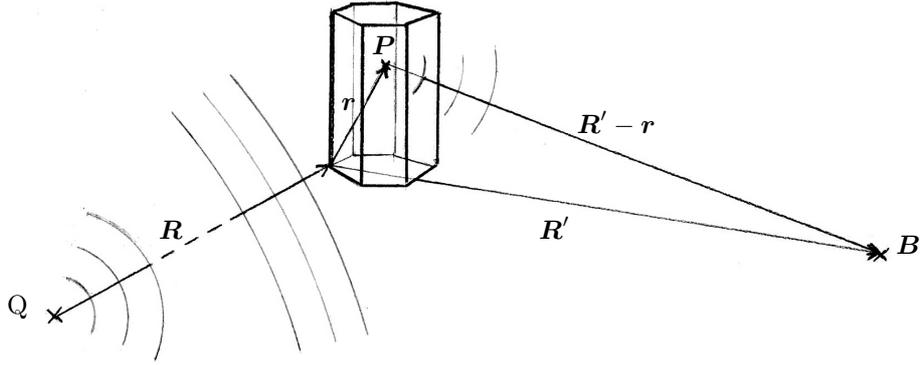


Abbildung 4: Allgemeine Streugeometrie und Bezeichnungen

Wir betrachten zunächst nur elastische Streuung ($|\mathbf{k}_i| = |\mathbf{k}_f|$). Wir werden sehen, dass dies gerade durch die Annahme einer nicht zeitabhängigen Verteilung der Streuzentren gegeben wird.

3.2 Elastische Streufunktion

Wir stellen uns die auf die Probe einfallenden Neutronen als ebene Welle vor. Ihre Amplitude hängt zu jedem Zeitpunkt t vom Ort $\mathbf{P} = \mathbf{R} + \mathbf{r}$ ab (vgl. Abb. 4):

$$\mathcal{A}_P = \mathcal{A}_0 e^{i[\mathbf{k}_i \cdot (\mathbf{R} + \mathbf{r})] - i\omega_0 t}. \quad (7)$$

Sie regt die Streuzentren zur Emission von Kugelwellen mit der Amplitude \mathcal{A}' an, die in einer festen Phasenbeziehung zur ursprünglichen Welle stehen.

$$\mathcal{A}'_P = \rho(\mathbf{P}) \mathcal{A}_P, \quad (8)$$

$\rho(\mathbf{r})$ heißt lokale Streudichte und hat die Einheit m^{-2} . Es trete keine Mehrfachstreuung auf⁵. Am Beobachtungsort \mathbf{B} erhalten wir für die von einem bestimmten Ort \mathbf{P} ausgehende Welle:

$$\mathcal{A}_B(\mathbf{r}, t) = \mathcal{A}_P(\mathbf{r}, t) \rho(\mathbf{r}) \frac{e^{i[\mathbf{k}_f \cdot (\mathbf{R}' - \mathbf{r})]}}{|\mathbf{R}' - \mathbf{r}|} \quad (9)$$

wobei \mathbf{k}_f in Richtung von $(\mathbf{R}' - \mathbf{r})$ zeigt.

Wir nehmen nun die Entfernungen R und R' groß gegenüber r an.

$$\mathcal{A}_B(\mathbf{r}, t) = \mathcal{A}_P(\mathbf{r}, t) \rho(\mathbf{r}) \frac{1}{R'} e^{i[\mathbf{k}_f \cdot (\mathbf{R}' - \mathbf{r})]} \quad (10)$$

⁵Entspricht der Born'schen Näherung in der quantenmechanischen Streutheorie

3 Theoretische Grundlagen

mit gleicher Richtung von \mathbf{k}_f für alle \mathbf{P} . Wir setzen \mathcal{A}_P ein und sortieren:

$$\mathcal{A}_B(\mathbf{r}, t) = \frac{\mathcal{A}_0}{R'} e^{i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{R} + \mathbf{k}_f \cdot \mathbf{R}')} \rho(\mathbf{r}) e^{-i[(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}] - i\omega_i t}. \quad (11)$$

Der erste Term ist ein konstanter Phasenfaktor, der nicht mehr vom Ort innerhalb der Probe abhängt. Die gesamte Streuamplitude ergibt sich nun durch Integration über den streuenden Bereich.

$$\mathcal{A}_B(t) \propto e^{-i\omega_i t} \int_V \rho(\mathbf{r}) e^{-i[(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}]} d\mathbf{r}. \quad (12)$$

Solange ρ nicht von der Zeit abhängt, enthält die Zeitabhängigkeit von \mathcal{A}_B nur die Frequenz ω_i (elastische Streuung).

Im Experiment haben wir keinen Zugriff auf die Amplitude der Welle sondern lediglich auf ihr Quadrat. Für die Streufunktion erhält man:

$$S(\mathbf{Q}) \propto \left| \int_V \rho(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2 \quad (13)$$

$$\text{mit: } \mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i. \quad (14)$$

Wir identifizieren die Streufunktion also bis auf einen Faktor als das Quadrat der Fouriertransformierten unserer Streudichte.

Literatur: vgl.[9], [14]

3.3 Kohärente vs. inkohärente Streuung

Da wir uns auf Wechselwirkungen mit den Kernen beschränken und die Wellenlängen von thermischen Neutronen ($\approx \text{\AA}$) groß im Vergleich zu den Kernabmessungen (10^{-4}\AA) sind, können wir uns die Probe in guter Näherung als Anordnung von punktförmigen Streuzentren vorstellen. Die Streudichte ist also von der Gestalt:

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i b_i \delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}) \quad (15)$$

wobei \mathbf{r}_i die Positionen der Streuzentren und b_i die jeweilige Streulänge bezeichnen. b ist ein Maß für die Amplitude der von einem Atom ausgehenden Kugelwelle und \bar{b} ihr Mittelwert.

Ein Material, in dem identische Atome regelmäßig angeordnet sind, besitzt als Streufunktion ebenfalls wieder ein regelmäßiges Punktgitter (siehe nächster Abschnitt). Im Allgemeinen jedoch besteht ein Kristall aus einem Isotopengemisch, dessen Bestandteile sehr unterschiedliche Streulängen für Neutronen besitzen können. In solch einem Fall ist die Interferenzbedingung lediglich für eine gemittelte Streulänge erfüllt. Setzt man (15) in (13) ein, so erhält man unter der Annahme einer statistischen Verteilung der

unterschiedlichen Streuzentren folgende Form für die Streufunktion:

$$S = (\bar{b})^2 S_{\text{koh.}} + (\bar{b}^2 - (\bar{b})^2) S_{\text{ink.}} \quad (16)$$

$S_{\text{ink.}}$ hängt dabei nicht mehr von der relativen Position der Atome untereinander und damit nicht mehr von der Struktur der Probe ab. Der zweite Term liefert also einen Signaluntergrund, der unabhängig vom Streuwinkel und der Probenausrichtung ist. Diese sogenannte inkohärente Streuung kann stets beobachtet werden, wenn die Streudichte lokal in unkorrelierter Weise variiert, also auch bei Punktdefekten im Gitter und zufällig verteilten Kern- und Hüllen-Spinausrichtungen. Ein populärer inkohärenter Streuer, der beinahe keinen kohärenten Anteil mehr besitzt, ist Vanadium. Da man keine störenden Bragg-Reflexionen beobachtet, eignet es sich besonders zu Justagezwecken.

Literatur: vgl.[14]

3.4 Reziproker Raum und Brillouin-Zonen

Die Probe, an der der größte Teil unserer Messungen durchgeführt werden soll, ist ein sehr guter kohärenter Streuer. Beschäftigen wir uns also nun mit dem Aussehen von $S_{\text{koh.}}$. Wir gehen zunächst von einem Bravais-Gitter mit einatomiger Basis aus. Die Streudichte hat die Form:

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{h,k,l} b \delta^3[(h \mathbf{a}_1 + k \mathbf{a}_2 + l \mathbf{a}_3) - \mathbf{r}], \quad (17)$$

wobei \mathbf{a}_i die erzeugenden Gittervektoren bezeichnen. Die Fouriertransformierte einer solchen Funktion lautet:

$$\tilde{\rho}(\mathbf{q}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \sum_{h,k,l} b \delta^3[(h \mathbf{a}_1 + k \mathbf{a}_2 + l \mathbf{a}_3) - \mathbf{r}] e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (18)$$

$$= \sum_{h,k,l} b e^{-i\mathbf{q}\cdot[h \mathbf{a}_1 + k \mathbf{a}_2 + l \mathbf{a}_3]}. \quad (19)$$

Summiert man über hinreichend viele Indizes, so ergibt sich wieder ein Punktgitter, das *reziproke Gitter*⁶. Der Raum der Wellenvektoren wird als *reziproker Raum* bezeichnet.

Die erzeugenden Vektoren \mathbf{g}_i des reziproken Gitters ergeben sich aus denen des ursprünglichen über die Beziehung⁷:

$$\mathbf{g}_i \cdot \mathbf{a}_j = 2\pi \delta_{i,j}. \quad (20)$$

Der reziproke Vektor \mathbf{g}_1 steht also auf den Vektoren \mathbf{a}_2 und \mathbf{a}_3 senkrecht und sein Betrag

⁶Man kann zeigen, dass das reziproke Gitter eines Bravais-Gitters wieder ein Bravais-Gitter ist, das alle Symmetrieelemente des ursprünglichen Gitters besitzt.

⁷die in Gl. (20) angegebene Definition ist die in der Physik übliche. Der Faktor 2π hängt von der Definition des Wellenvektors ab und wird besonders in der Kristallographie auch gelegentlich weggelassen.

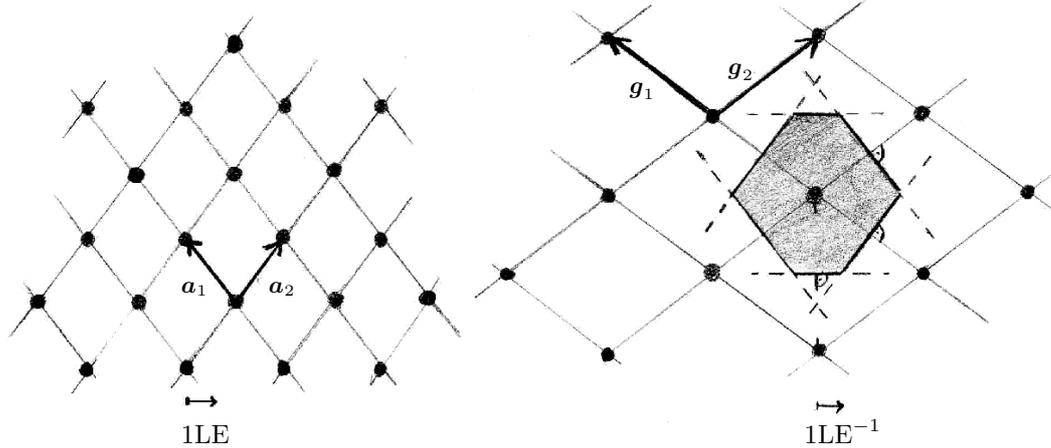


Abbildung 5: 2-dimensionales Punktgitter im realen und im reziproken Raum. Um einen reziproken Gitterpunkt ist die erste Brillouin-Zone eingezeichnet. Beachten sie, dass die erzeugenden Vektoren beider Gitter Gl. (20) erfüllen.

ist:

$$\frac{2\pi}{(a_1 \cos \angle(\mathbf{a}_1, (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)))}. \quad (21)$$

Im einfachsten Fall, dem sc-Gitter, stehen alle (realen) Gittervektoren paarweise aufeinander senkrecht. Die Richtungen der reziproken erzeugenden Vektoren fallen also mit denen des realen Gitters zusammen. Man beachte aber, dass die Dimension des reziproken Gitters ebenso wie die von Wellenvektoren 'm⁻¹' ist (siehe Gl. (20)).

In (13) haben wir die Streufunktion als Quadrat der Fouriertransformierten der Streudichte identifiziert. Sie ist dann von 0 verschieden, wenn folgende Bedingung erfüllt ist:

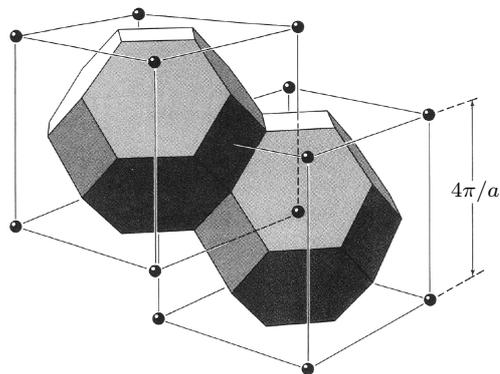
$$\mathbf{Q} = \mathbf{G} = h\mathbf{g}_1 + k\mathbf{g}_2 + l\mathbf{g}_3 \quad (\text{Laue-Bedingung}). \quad (22)$$

Wellenvektoren, die diese Gleichung erfüllen, bilden die Bragg-Reflexe im Spektrum der Probe. Sie werden mit Hilfe der Indizes h, k, l durchnummeriert.

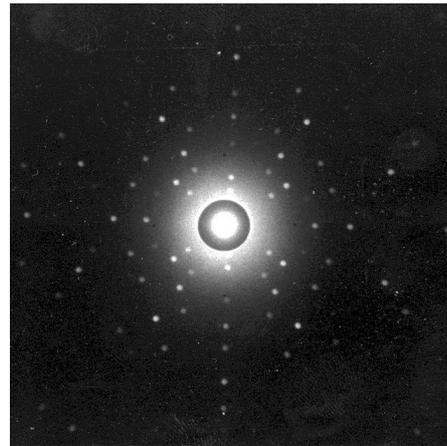
Üblicherweise werden das fcc-Gitter bzw. das bcc-Gitter nicht über ihre primitiven Einheitszellen, sondern als sc-Gitter mit mehratomiger Basis aufgefasst. In der Folge tauchen nicht alle Reflexe des sc-Gitters auf. Dies wird durch den *Strukturfaktor* beschrieben und ist noch Gegenstand des Vorbereitungsseminars. Gl. (20) liefert dann nicht die Erzeugenden des reziproken Gitters.

Eine nützliche Konstruktion zur Arbeit mit Wellenvektoren im reziproken Raum ist die der Brillouin-Zonen. Man erhält sie, indem man in ein reziprokes Gitter die mittelsenkrechten Ebenen der Verbindungsvektoren eines reziproken Gitterpunktes mit allen anderen einzeichnet⁸ (siehe Abb. 5).

⁸Alle einfallenden ebenen Wellen, deren Wellenvektoren auf dem Rand einer Brillouin-Zone enden,



(a) Das reziproke Gitter eines fcc-Kristalls ist ein bcc-Gitter. Gezeichnet sind zwei erste Brillouin-Zonen. Bei Kristallen, die wie z. B. Silizium aus zwei gegeneinander verschobenen fcc-Gittern bestehen, treten jedoch nicht alle Punkte als Reflexe in Erscheinung.



(b) Laue-Aufnahme eines Siliziumkristalls ([110]-Richtung) bei Bestrahlung mit polychromatischer Röntgenstrahlung erhalten wir eine zweidimensionale Projektion des reziproken Gitters bis zu bestimmten Indizes, die durch die minimale Wellenlänge der Röntgenstrahlung festgelegt werden.

Abbildung 6: 3-dimensionale Betrachtung der elastischen Streuung.

Achtung: Die Konstruktion der Brillouin-Zonen richtet sich immer nach dem zugrundeliegenden Bravais-Gitter. Germanium und Silizium beispielsweise besitzen ein fcc-Gitter mit 2-atomiger Basis. Dies wirkt sich insofern auf die Streufunktion aus, als dass einige Reflexe wegfallen, andere verstärkt werden. Das reziproke Gitter bleibt jedoch das eines fcc-Kristalls.

Die ersten Brillouin-Zonen um die Punkte des reziproken Gitters füllen den reziproken Raum aus. Anhand dieser Einteilung lassen sich Punkte hoher Symmetrie identifizieren. Diese sind für gewöhnlich mit Buchstaben bezeichnet (siehe Abb. 9).

Literatur: [9] Kap. über die Beugung an periodischen Strukturen.

3.5 Inelastische Streuprozesse

Wir lassen nun eine zeitliche Veränderung der Streudichte ρ zu.

$$\rho(\mathbf{r}(t)) \propto \sum_n \delta(\mathbf{r}_n(t) - \mathbf{r}). \quad (23)$$

erfüllen die elastische Streubedingung (22), da ja ein- und austretender Wellenvektor gleich lang sein müssen.

3 Theoretische Grundlagen

Die Atome sollen kleine Schwingungen um ihre Ruhelage ausführen,

$$\mathbf{r}_n(t) = \mathbf{r}_n + \mathbf{u}_n(t). \quad (24)$$

Unter der Annahme, dass die Kräfte zwischen zwei benachbarten Atomen proportional zu ihrer gegenseitigen Auslenkung sind (harmonische Näherung), lässt sich jeder Schwingungszustand des Kristalls als Superposition von ebenen Wellen mit Wellenvektoren \mathbf{q} beschreiben⁹:

$$\mathbf{u}_n(t) = \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{u} e^{\pm i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n - \omega(\mathbf{q})t)}. \quad (25)$$

Die Streuamplitude war nach den Glen. (13) und (23):

$$\mathcal{A} \propto e^{-i\omega_i t} \sum_n e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_n(t)}. \quad (26)$$

Wir setzen Gl. (24) ein und entwickeln die Exponentialfunktion für kleine \mathbf{u} :

$$\mathcal{A} \propto e^{-i\omega_i t} \sum_n e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_n} e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}_n(t)} \quad (27)$$

$$\approx e^{-i\omega_i t} \sum_n e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_n} [1 - i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}(t)] \quad (28)$$

$$= e^{-i\omega_i t} \sum_{n,\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_n} - i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u} e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_n} e^{\pm i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n - \omega(\mathbf{q})t)}. \quad (29)$$

Gl. (29) enthält dann neben den bereits aus der elastischen Streuung bekannten Termen für jedes \mathbf{q} den Ausdruck:

$$\sum_n i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u} e^{-i[(\mathbf{Q} \mp \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}_n] - i[\omega_i \pm \omega(\mathbf{q})]t}. \quad (30)$$

Es gibt also Streuwellen, deren Frequenzen gerade um die Frequenz der Kristallschwingung gegenüber der Primärwelle verschoben sind. Zusätzlich gilt analog zum elastischen Fall, dass die Summe in (30) nur dann von 0 verschiedene Werte annimmt, falls die Gleichung

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f = \mathbf{G} \mp \mathbf{q} \quad (31)$$

mit einem reziproken Gittervektor \mathbf{G} erfüllt ist. Die Frequenzbedingung lautet:

$$\omega_f = \omega_i \pm \omega(\mathbf{q}). \quad (32)$$

⁹Dies entspricht auch der Lösung für das erste Glied einer Taylorentwicklung von anharmonischen Potentialen.

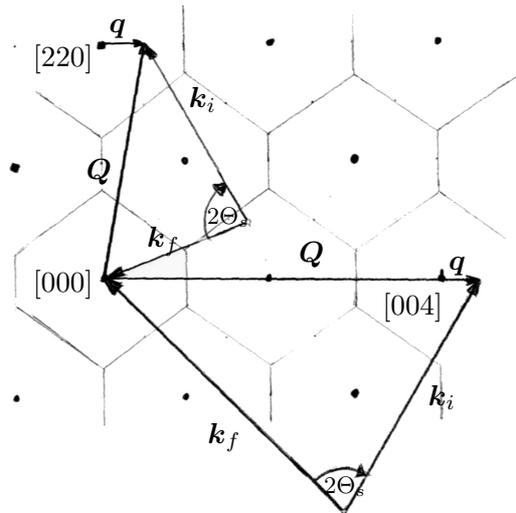


Abbildung 7: Streudiagramme für die inelastische Streuung von Neutronen an einem fcc-Kristall. Gezeichnet ist die reziproke $[1\bar{1}0]$ Ebene. Bezeichnungen wie im Text. Der Energieübertrag äußert sich über die unterschiedliche Länge von \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f

Multipliziert man beide Gleichungen mit \hbar und wählt $\mathbf{G} = 0$, so erhält man:

$$\hbar\Delta\omega \mp \hbar\omega(\mathbf{q}) = 0, \quad (33)$$

$$\hbar\mathbf{k}_f - \hbar\mathbf{k}_i \mp \hbar\mathbf{q} = 0. \quad (34)$$

Dies sind gerade die quantenmechanischen Ausdrücke für die Impuls- und Energieerhaltung bei Streuung des Neutrons an einem Teilchen, das üblicherweise als *Phonon* bezeichnet wird. In der Tat lässt sich diese Analogie auch quantenmechanisch untermauern.

Siehe z.B.[2] Anhang N.

Der Impuls eines Phonons ist, wie aus den Gleichungen ersichtlich, nur modulo eines reziproken Gittervektors bestimmt. In der Tat sind zwei Gitterschwingungen, deren Wellenvektoren sich nur um einen reziproken Gittervektor unterscheiden, physikalisch gleich (siehe Abb. 8). Man kann daher den Wellenvektor jedes Phonons immer relativ zum nächstgelegenen reziproken Gitterpunkt auffassen und sich bei theoretischen Überlegungen auf die 1. Brillouin-Zone beschränken. Dabei ist zu beachten, dass die Wahrscheinlichkeit für die Anregung eines Phonons mit der Intensität des nächstliegenden elastischen Peaks skaliert. Beispiel siehe Abb. 12 Aufgrund dieser Eigenschaft der Phononen spricht man von Teilchen mit Quasiimpuls¹⁰.

¹⁰Der tatsächliche Impulsübertrag der Neutronen wird, wie in der elastischen Streuung, vom Kristall als Ganzes aufgenommen und interessiert diesen aufgrund seiner Masse herzlich wenig

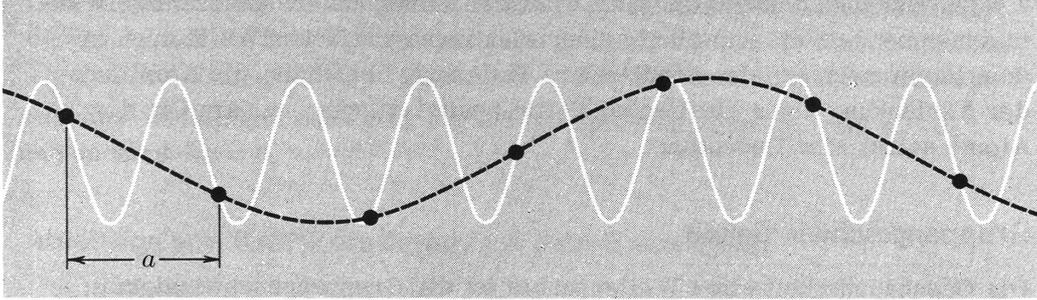


Abbildung 8: Äquivalenz von Gitterschwingungen aus [10]: Beide hier skizzierten Wellen führen zu den gleichen Auslenkungen der Atome aus der Ruhelage. Sie sind physikalisch identisch. Alle Wellen, deren Wellenlänge λ_1 kleiner ist als $2a$ (weiße Linie) können auf solche zurückgeführt werden, für die $\lambda_2 \geq 2a$ gilt (schwarze Linie). $\frac{2\pi}{\lambda_1} = \frac{2\pi}{\lambda_2} + n\frac{2\pi}{a}$, wobei $n\frac{2\pi}{a}$ die Länge eines reziproken Gittervektors ist. Die Wellen mit $\lambda \geq 2a$ sind aber gerade die, deren Wellenvektoren in der ersten Brillouin-Zone liegen.

Literatur: vgl. [9] Kap. 4

Anschaulich kann man sich inelastische Streuprozesse auch so vorstellen, dass ein Neutron eine Schwingung im Kristall anregt, dabei an Energie verliert bzw. durch Streuung an einem bereits schwingenden Atom noch Energie erhält, was in einer Vernichtung der Schwingung resultiert. Um Energie abzugeben, muss also im Kristall eine bestimmte Schwingungsmode bereits angeregt sein. Energiebetrachtungen führen auf das Prinzip der „detailed balance“:

$$S(\mathbf{Q}, -\omega) = e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}} S(\mathbf{Q}, \omega) \quad (35)$$

mit dem Boltzmannfaktor $k_B T$. Bei Zimmertemperatur sind die Verhältnisse jedoch nahezu ausgeglichen.

Was zeichnet nun Neutronen zur Messung von Gitterschwingungen gegenüber den wesentlich leichter zu handhabenden und in höherem Fluss verfügbaren Röntgenstrahlen aus, zumal letztere auch mit ungleich höherer Brillanz z. B. in Synchrotronquellen erzeugt werden können? Thermische Neutronen haben im Mittel eine Energie von ca. 30 meV was einem Wellenvektor von 3.8 \AA^{-1} entspricht. Die Dimensionen des reziproken Gitters sind durch Gleichung (20) gegeben und liegen für Germanium bei ca. 2 \AA^{-1} . Röntgenstrahlen, deren Wellenvektoren in diesem Bereich liegen, besitzen Energien von $\approx 10 \text{ keV}$. Die Anregung einer Gitterschwingung mit der Energie 10 meV entspricht bei Photonen also einer relativen Energieänderung von 10^{-6} . Für Neutronen handelt es sich um Veränderungen von der Größenordnung der kinetischen Energien.

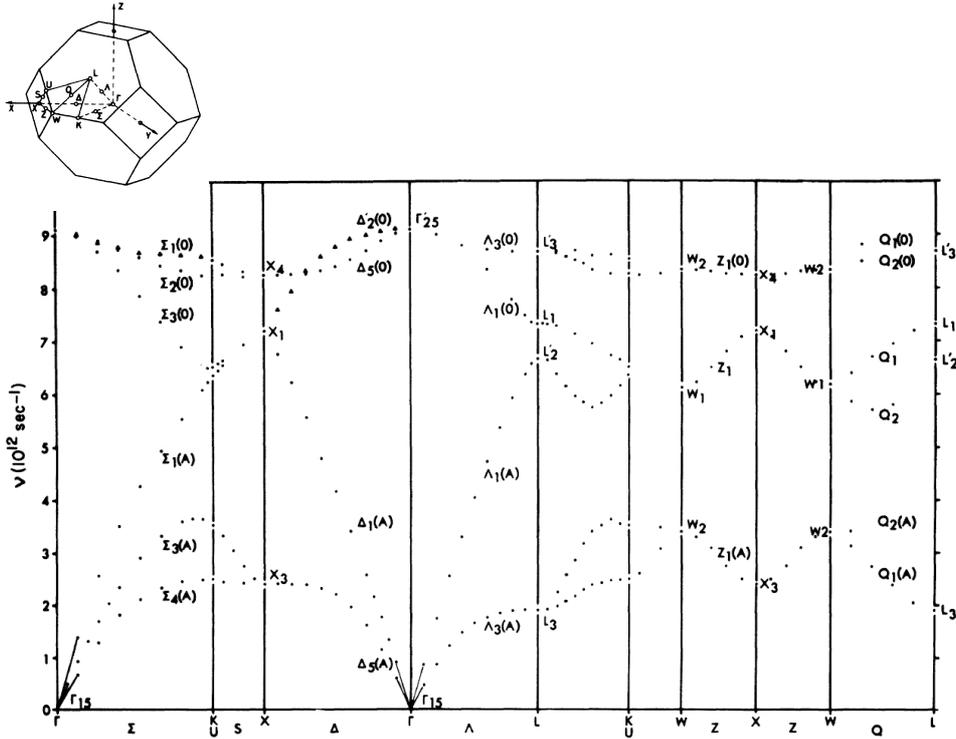


Abbildung 9: Dispersionsrelation von Germanium bei 80 K aus [11]. Punkte besonders hoher Symmetrie sind mit Buchstaben bezeichnet (kleines Bild).

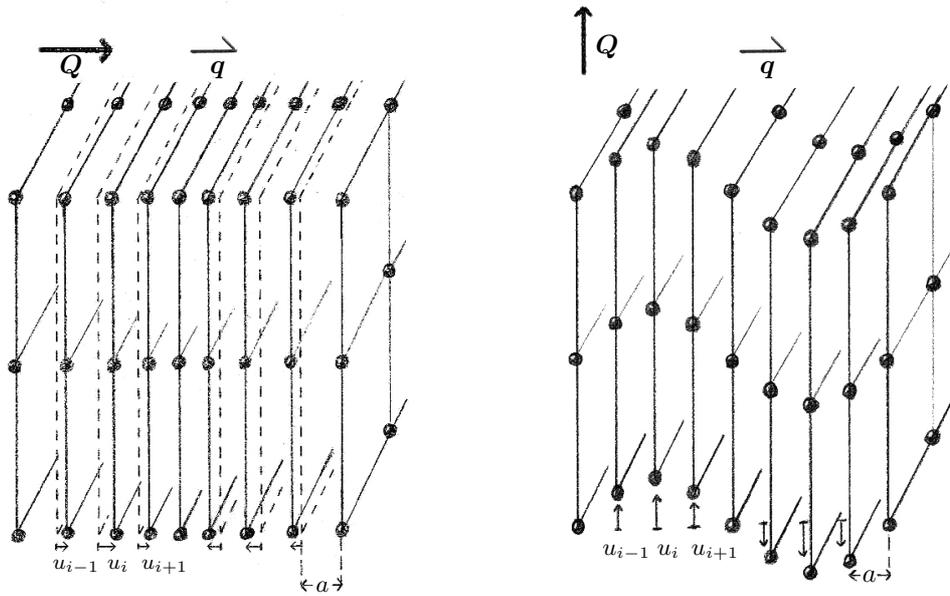
3.6 Dispersionsrelation

Ein Ziel des Versuches ist es, den Zusammenhang $\omega(\mathbf{q})$ experimentell zu bestimmen. $\omega(\mathbf{q})$ wird als (Phononen-)dispersionsrelation bezeichnet. Sie enthält im Grunde alle Informationen über die dynamischen Eigenschaften der untersuchten Materie. Größen wie Schallgeschwindigkeit und spezifische Wärme (phononische Anteile) lassen sich aus ihr ableiten. Sie lässt aber auch Rückschlüsse auf die vorherrschenden Wechselwirkungspotentiale zwischen den Atomen zu. Zur Veranschaulichung trägt man die an sich ja 3-dimensionale Relation für mehrere Symmetrierichtungen nebeneinander auf.

Das prinzipielle Aussehen von $\omega(\mathbf{q})$ kann man sich anhand einer eindimensionalen Atomkette klar machen. Falls noch nicht in der Vorlesung geschehen, liefern die meisten Lehrbücher sehr gute Herleitungen (siehe z. B. [2]). Die Verallgemeinerung geschieht dann durch den Übergang zu gegeneinander schwingenden, parallelen Ebenen im Kristall.

3.7 Transversale vs. longitudinale Phononen

Wie Sie aus der Mechanik wissen, gibt es bei der Ausbreitung von Wellen grundsätzlich die Möglichkeiten, die Auslenkungen der einzelnen Atome parallel (longitudinal) oder senkrecht (transversal) zur Ausbreitungsrichtung zu wählen. Beide Anregungen werden



(a) longitudinale...

(b) und transversale Schwingungen

Abbildung 10: Beachten Sie, dass der Impulsübertrag der Neutronen \mathbf{Q} , stets in Richtung der tatsächlichen Auslenkungen \mathbf{u}_i zeigt.

im Allgemeinen unterschiedliche Energien besitzen. Natürlich gibt es für jedes \mathbf{q} zwei transversale Phononen, die senkrecht aufeinander polarisiert sind, von denen aber nur eine in der Streuebene liegt. In Kristallen hoher Symmetrie sind diese Anregungen energieentartet. Ein Kristall mit einatomiger Basis besitzt also 3 sog. Dispersionszweige. Hat die Basis n Atome, so erhöht sich diese Zahl auf $3n$ (3 akustische ($E = 0$ im Zentrum der B-Zone) und $3(n - 1)$ optische Zweige ($E \neq 0$ bei $q = 0$)). Näheres hierzu im Vorbereitungsseminar. Abb. 9 zeigt die Verhältnisse am (sehr einfachen) Beispiel Germanium.

Literatur: [10]

Wie können nun transversale und longitudinale Schwingungen im Experiment unterschieden werden? In der Formel für die inelastische Streufunktion (30) taucht das Skalarprodukt $\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}$ auf, wobei \mathbf{u} die Polarisierung der Welle bezeichnet (Abb. 10). Dies bedeutet, dass, analog zur klassischen Vorstellung, eine Schwingung nur angeregt wird, wenn \mathbf{Q} eine Komponente entlang der Polarisationsrichtung besitzt. In Abb. 7 wird einmal ein longitudinales, einmal ein transversales Phonon gemessen. Beachten Sie, dass der Wellenvektor \mathbf{q} beide Male in die gleiche Richtung zeigt.

3.8 Was wir messen – Rückschlüsse auf die Probe

Soweit zu den relevanten physikalischen Effekten. Beleuchten wir nun den Zusammenhang zwischen der Spektrometerkonfiguration und den Variablen \mathbf{Q} und ΔE . Bei *fest eingestellten Winkeln* werden die Längen der ein- und ausfallenden Wellenvektoren \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f durch die Stellung von $2\Theta_m$ und $2\Theta_a$ ¹¹ festgelegt. Wir haben es mit Materiewellen zu tun, also ist

$$E_{\text{kin}} = \frac{(\hbar k_n)^2}{2m}, \quad (36)$$

mit \mathbf{p} dem Impuls und m der Masse des Neutrons. Folglich ist auch die Größe

$$\omega = \frac{\Delta E}{\hbar} = \hbar \frac{|\mathbf{k}_i|^2 - |\mathbf{k}_f|^2}{2m_n} \quad (37)$$

gegeben.

Durch das Aufsetzen der Probe wählen wir eine Streuebene und legen die Richtung von \mathbf{k}_i relativ zum Kristallgitter der Probe, charakterisiert durch den Probendrehwinkel ω_s , fest. Innerhalb der Streuebene bestimmt $2\Theta_s$ die Richtung von \mathbf{k}_f . \mathbf{Q} ergibt sich dann einfach aus Gl. (14).

Umgekehrt folgt aus einer festen *Vorgabe von ω und \mathbf{Q}* noch keine bestimmte Konfiguration des Gerätes.

Der Einfachheit halber wird bei den meisten Scans entweder \mathbf{Q} oder ΔE konstant gehalten. Dabei bietet sich bei sehr steilen Dispersionsästen, nahe dem Zentrum der Brillouin-Zone, der konst.- E -Modus an (Abb. 11(b)), standardmäßig wird jedoch mit konst.- \mathbf{Q} (Abb. 11(a)) gemessen. Nehmen Sie sich die Zeit und überlegen Sie kurz, wie die einzelnen Winkel verändert werden müssen, um die gezeigten Scans zu durchfahren.

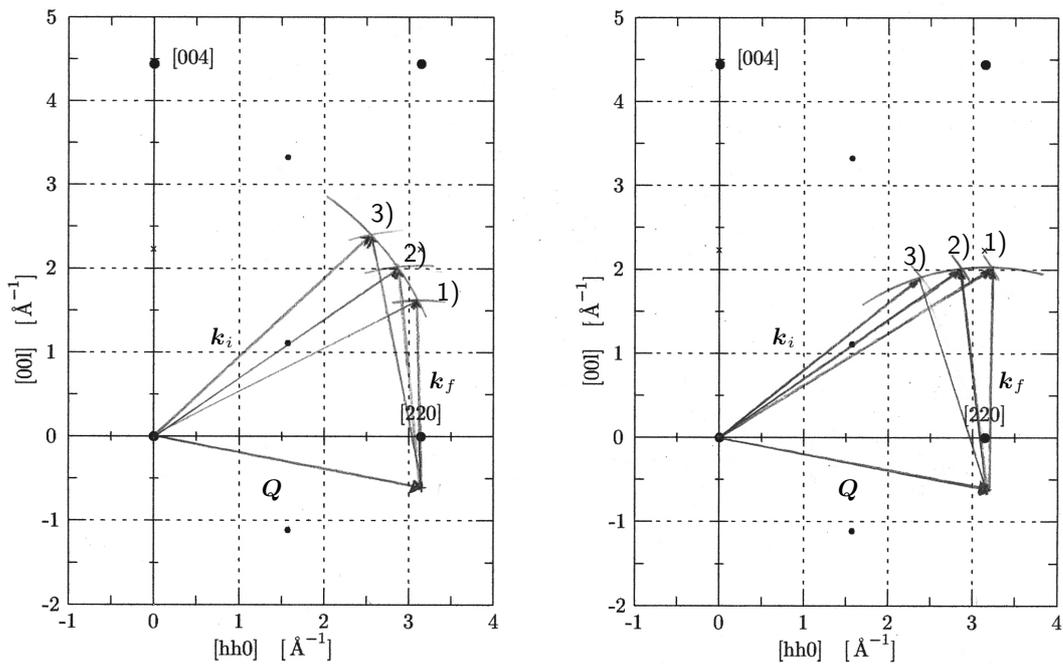
Wie Abb. 12 demonstriert, bleibt immer noch die Möglichkeit, die Länge von \mathbf{k}_i oder \mathbf{k}_f fest zu wählen. Wie die Freiheiten bei der Wahl der Winkel zur Optimierung der Ergebnisse verwendet werden, ist Thema bei der Versuchsplanung im Vorbereitungsseminar.

3.9 Normierung der Zählraten

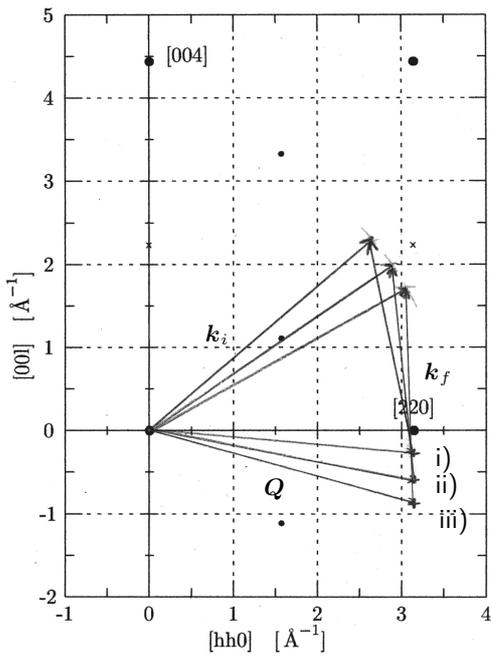
Bei der Planung der Messdauer ist die einfachste Überlegung, für jeden Scan eine Zeitkonstante festzulegen, innerhalb der auf jedem Messpunkt Detektorereignisse gesammelt werden. Die Zählrate Z_{Det} hängt jedoch neben dem Streuquerschnitt auch von

¹¹die Winkel $2\Theta_m$ bzw. $2\Theta_a$ sind die relevanten Größen. Die Kristalldrehungen \mathbf{mth} und \mathbf{ath} werden auf $2\Theta_m/2$ und $2\Theta_a/2$ fixiert.

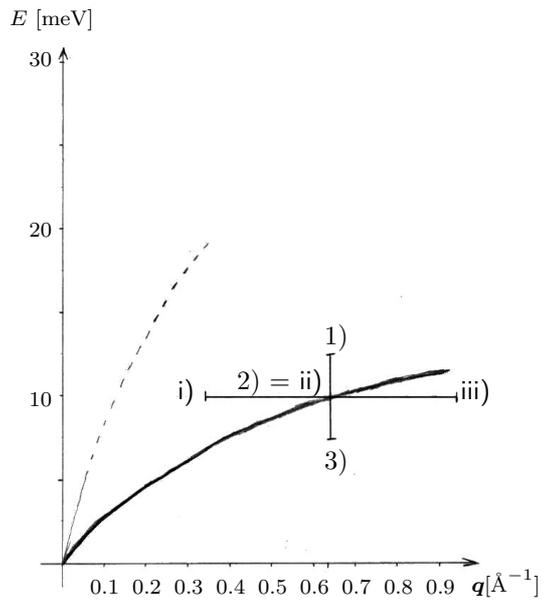
3 Theoretische Grundlagen



(a) Beispiele für konstant- Q Scans



(b) Ein konstant- E Scan



(c) Korrespondierende Punkte in der Dispersionsrelation

Abbildung 11: Beispiele für verschiedene Scans (Streudreiecke und Dispersionsrelation)

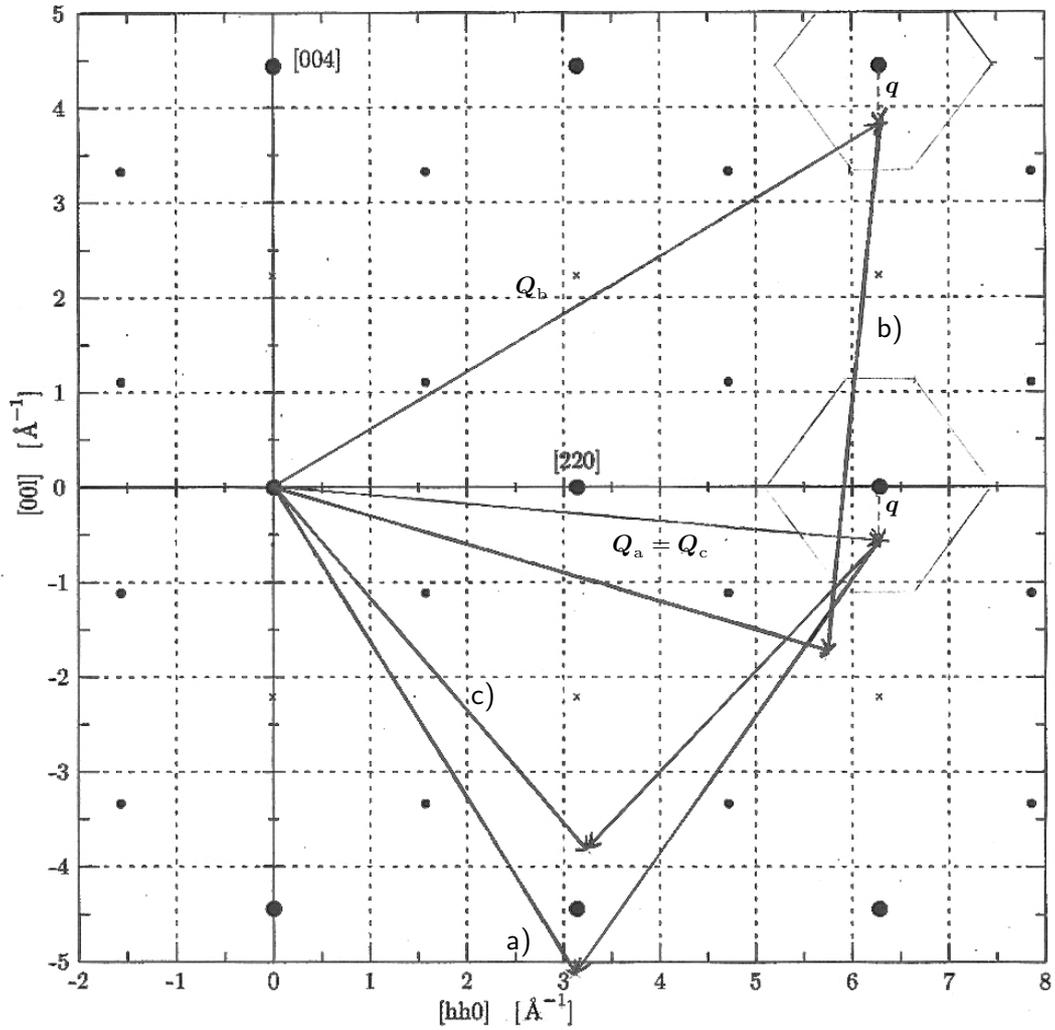


Abbildung 12: Die gleiche phononische Anregung auf verschiedene Arten gemessen:
 (a) \leftrightarrow (b): Messung an unterschiedlichen elastischen Peaks aber mit identischen $|\mathbf{k}_i|$ und $|\mathbf{k}_f|$.
 (a) \leftrightarrow (c): Gleicher Punkt im reziproken Raum mit unterschiedlichen \mathbf{k}_i realisiert.

Instrumentparametern ab, die sich während der Messung ändern.

$$Z_{\text{Det}} \propto I_{\text{prim}}(\mathbf{k}_i) \cdot R_{\text{Mono}}(|\mathbf{k}_i|) \frac{d^3\sigma}{d\mathbf{k}_{fx} d\mathbf{k}_{fy} d\mathbf{k}_{fz}} R_{\text{Ana}}(|\mathbf{k}_f|) \cdot P_{\text{Det.}}(|\mathbf{k}_f|) \quad (38)$$

$$= I_{\text{prim}}(\mathbf{k}_i) \cdot R_{\text{Mono}}(|\mathbf{k}_i|) \frac{1}{|\mathbf{k}_i|} S(\mathbf{Q}, \omega) R_{\text{Ana}}(|\mathbf{k}_f|) \cdot P_{\text{Det.}}(|\mathbf{k}_f|). \quad (39)$$

Es bezeichnen $R(|\mathbf{k}|)$ die Reflektivitäten der Bragg-Kristalle, $P_{\text{Det.}}(|\mathbf{k}_f|)$ die Detektoreffizienz und $I_{\text{prim.}}(|\mathbf{k}_i|)$ die Primärintensität bei der verwendeten Einfallenergie.

Im vorliegenden Versuch sind wir primär an der *Lage* der phononischen Anregungen im \mathbf{Q} - ω -Raum interessiert und lediglich sekundär an ihrer Intensität. Wir kümmern uns also nicht um die Vergleichbarkeit *verschiedener* Scans untereinander. Lediglich *innerhalb eines* Scans müssen die Zählraten der einzelnen Punkte normiert sein, um die Lage eines Peaks korrekt zu bestimmen.

Für die meisten Messungen platziert man im monochromatisierten Strahl einen Monitor-detektor. Die Detektionswahrscheinlichkeit für Neutronen der Geschwindigkeit v ist proportional zur Verweildauer t der Neutronen im Monitor der Dicke d :

$$t = \frac{d}{v} = \frac{d m_{\text{n}}}{\hbar |\mathbf{k}|} \quad (40)$$

Man erwartet also als Monitorzählrate:

$$Z_{\text{Moni}} \propto I_{\text{prim}}(\mathbf{k}_i) \cdot R_{\text{Mono}}(|\mathbf{k}_i|) \frac{1}{|\mathbf{k}_i|} \quad (41)$$

Für eine Messung werden Ereignisse im Detektor gezählt, bis eine bestimmte Anzahl Monitorcounts eingetreten ist. Die tatsächliche Detektorzählrate mit Monitor Z'_{Det} ist dann:

$$Z'_{\text{Det}} = \frac{Z_{\text{Det}}}{Z_{\text{Moni}}} \propto S(\mathbf{Q}, \omega) R_{\text{Ana}}(|\mathbf{k}_f|) \cdot P_{\text{Det.}}(\mathbf{k}_f). \quad (42)$$

Hält man nun während eines Scans $|\mathbf{k}_f|$ konstant, wie in Abb. 11(a)(rechts) illustriert, fällt auch diese Abhängigkeit der Messpunkte weg. Sollte es aus anderen Gründen nötig sein $|\mathbf{k}_f|$ zu variieren, müssen die entsprechenden Korrekturen bei der Auswertung vorgenommen werden.

3.10 Auflösungsfunktion

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde außer acht gelassen, dass, wenn das Spektrometer auf einen Punkt des \mathbf{Q} - ω -Raumes gerichtet ist, immer die integrierte Intensität aus einem endlichen Volumen um diesen Punkt gemessen wird. Ein scharfer (δ -)Peak in der Streufunktion bei (\mathbf{Q}_0, ω_0) hat im Messsignal die Form:

$$Z_{\text{Det}}(\mathbf{Q}, \omega) \propto R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0). \quad (43)$$

3 Theoretische Grundlagen

R wird *Auflösungsfunktion* genannt und hängt lediglich von der Spektrometerkonfiguration ab. Für gewöhnlich wird R gaußförmig in den einzelnen Komponenten angenommen.

Das resultierende Messsignal ergibt sich aus der Faltung:

$$Z_{\text{Det}}(\mathbf{Q}, \omega) \propto \int S(\mathbf{Q}', \omega') R(\mathbf{Q}' - \mathbf{Q}, \omega' - \omega) d\mathbf{Q}' d\omega'. \quad (44)$$

Zur Veranschaulichung zeichnet man eine Niveaulinie der Auflösungsfunktion (genauer: einer 2-dimensionalen Projektion der Auflösungsfunktion). Sie hat meistens die Form einer Ellipse und gibt an, welchen Bereich der Streufunktion das Gerät „sieht“. In Abb. 13 sind Projektionen des Auflösungsellipsoides in die Dispersionsrelation eingezeichnet. Daneben sind die zu erwartenden Intensitätsverläufe skizziert. Als *fokussiert* wird eine Messung bezeichnet, wenn die kurze Achse des Auflösungsellipsoides senkrecht zu der zu messenden Dispersionsfläche steht.

Es ist wichtig, sich klar zu machen, dass eine allzu enge Auflösungsfunktion nicht immer erwünscht ist. Ein Beispiel: Wir betrachten einen konst-Q-Scan durch eine „waagrechte“, scharfe Dispersionsfläche:

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = S_0 \delta(\omega - \omega_0). \quad (45)$$

Die Messung sei fokussiert, d.h.

$$R(\mathbf{Q}, \omega) = e^{-\frac{\omega^2}{\sigma_\omega}} \cdot R(\mathbf{Q}). \quad (46)$$

Gl.(44) liefert:

$$Z(\omega) \propto e^{-\frac{\omega^2}{\sigma_\omega}} \int R(\mathbf{Q}) d\mathbf{Q}. \quad (47)$$

Weitet man das Auflösungsellipsoid in den Impulskoordinaten auf, so steigt die gemessene Intensität. Die Breite der Linie hängt lediglich vom Faktor $e^{-\frac{\omega^2}{\sigma_\omega}}$ ab.

Literatur: [12] Kap.4

Zur tatsächlichen Form der Auflösungsfunktion tragen nun verschiedene Effekte bei: Die Bragg-Kristalle bestehen in Wirklichkeit nicht aus perfekten Gittern, vielmehr kann man sie sich als eine Zusammenstellung kleiner Einkristalle, sog. Mosaikkristalle, vorstellen, deren Netzebenennormalen geringfügig vom Mittelwert abweichen. Dieser „Mosaikspread“, üblicherweise durch die Winkelgröße η_m bezeichnet, führt zu einer Verbreiterung der Braggpeaks z.B. am Monochromator. Weitere Faktoren sind z.B. die endliche Winkelauflösung des Detektors, eine endliche Probengröße sowie Strahldivergenzen.

Der am Monochromator reflektierte Strahl besteht aus einem Bündel von Wellenvektoren, das durch eine Verteilung $p_m(\mathbf{k}_i)$, die Transmissionsfunktion des Monochromators beschrieben wird. Analoge Überlegungen stellt man für die Analysatorachse an. Um nun

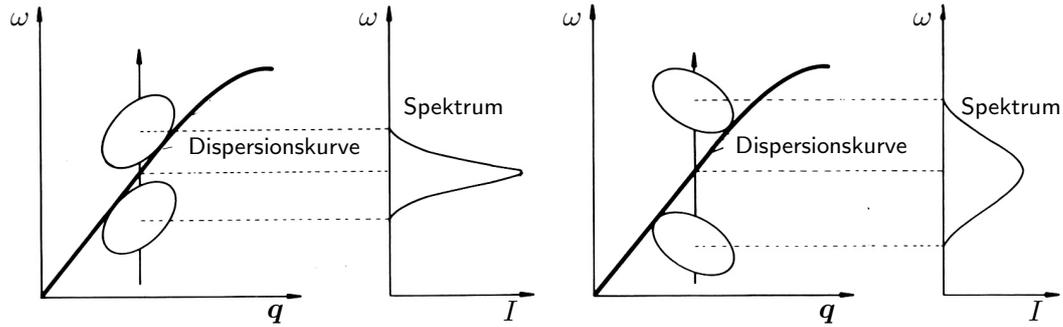


Abbildung 13: Fokussierte vs. defokussierte Messung.

die Auflösung des gesamten Spektrometers zu bestimmen, werden die beiden Transmissionsfunktionen unter Berücksichtigung des Winkels $2\Theta_s$ miteinander gefaltet. Im Allgemeinen überlässt man diese Berechnungen einer Simulationssoftware. Sie sollen jedoch im Rahmen des Vorbereitungsseminars eine qualitative Vorstellung erlangen.

Literatur: [6]

3.11 Linienformen

Halten wir fest: Bei scharfen Peaks in der Streufunktion stellt sich ein gaußförmiges Messsignal ein. Bei den meisten von uns angestellten Messungen wird genau dieser Fall eintreten. Einige Substanzen weisen jedoch verbreiterte, Phononenresonanzen, sogenannte *soft modes*, auf. Ursache hierfür sind Phonon-Phonon- und Phonon-Elektron-Wechselwirkungen¹² und eine daraus resultierende endliche Lebensdauer τ der einzelnen Schwingungszustände. Im Rahmen der Behandlung des gedämpften harmonischen Oszillators identifiziert man die Linienprofile als Lorentzkurven:

$$S(\omega) \propto \frac{\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\frac{\omega}{\tau})^2} \quad (48)$$

mit der Linienbreite (FWHM):

$$\delta\omega = \frac{1}{2\tau}. \quad (49)$$

Als resultierendes Messsignal einer solchen „weichen“ Linie erhalten wir die Faltung einer Lorentz- mit einer Gaußkurve. Diese Voigt-Profil genannte Form ist mathematisch schlecht zu fassen. Falls die Breiten der beiden Einzelprofile jedoch vergleichbar sind, ergibt sich die Breite der Voigt-Linie in guter Näherung als Summe der Breiten der Lorentz- und der Gaußkurve.

¹²Wir haben diese Effekte mit der Annahme eines harmonischen Kristalls vernachlässigt.

4 Durchführung des Versuchs

Legt man Wert auf eine Bestimmung der *Peakbreiten*, so muss die Auflösungsfunktion vom Messsignal entfaltet werden. Die Auswertungssoftware bietet entsprechende Möglichkeiten.

Literatur: [5], [7]

4 Durchführung des Versuchs

Das PUMA ist ein komplexes Forschungsgerät, an dem normalerweise Messungen an Proben unter speziellen Bedingungen bezüglich Temperatur und Druck durchgeführt werden. Phononenmessungen dienen beispielsweise dazu, sich über die Wechselwirkungspotentiale in Festkörpern klar zu werden. Um die Ausarbeitung des Versuchs nicht unnötig zu verkomplizieren, wollen wir auf derartige Analysen verzichten.

Die Ausgangsposition im Praktikum ist eine andere: Primäres Ziel ist es, Ihnen einen Einblick in die Möglichkeiten der Neutronenstreuung an einem Dreiachsenspektrometer zu gewähren. Um die eigentlichen Messergebnisse zu erhalten, müssen Sie zunächst die Funktionsweise des Gerätes kennen lernen. Dies schließt auch die Durchführung von Justagemessungen ein, die im professionellen Betrieb teilweise automatisiert sind. Die Daten werden schließlich an einer Standardprobe (Germanium) genommen.

Der grobe Ablauf des Versuchs sei kurz skizziert:

1. Vorbereitung

- Führung durch den Reaktor mit genaueren Erläuterungen zum PUMA.
- Erarbeiten der theoretischen Grundlagen im Rahmen eines Seminartermines.
- Erstellen einer Messstrategie und genaue Versuchsplanung.

2. Justage

- Kalibrierung des Gerätes.
- Justage der Probe(n).
- Jeweils Kontrollscans (Sie werden dabei auch in das Userinterface am PUMA eingewiesen.)

3. Messungen

- Messungen an inkohärenten Streuern zu Linienbreite und Spektrometerauflösung.
- Durchführen der geplanten Scans zur Bestimmung der Lage des Auflösungsellipsoides.
- Ausmessen eines Astes der Dispersionsrelation von Germanium mittels verschiedenartiger Scans.

5 Zur Auswertung

Wie üblich ist im Anschluss an die Durchführung eine Ausarbeitung anzufertigen. Sie muss alle durchgeführten Arbeiten kurz beschreiben. Dabei soll klar werden, dass der Sinn und Zweck der einzelnen Schritte verstanden wurde. Wenn Sie bereits während der Durchführung ausführlich alle Schritte mitprotokollieren, reduziert sich der spätere Arbeitsaufwand.

Im Anschluss daran ist eine Interpretation der Messungen zu geben. Vermeiden Sie die Wiederholung theoretischer Inhalte, die bereits Teil der Anleitung sind. Die Darstellung sollte dennoch in sich schlüssig sein.

Im Einzelnen:

- Bestimmen Sie die Auflösung des Spektrometers mit verschiedenen Kollimationen bei der Messung der inkohärenten Streuer mit Hilfe der Vanadiumspektren. Versuchen Sie nun die Linienbreite der Anregungen im Paraffin abzuschätzen und berechnen Sie deren Lebensdauer.
- Im Falle der Messungen zum Auflösungsellipsoid zeichnen Sie Lage und Größe desselben in eine Skizze der Dispersionsrelation ein und ordnen sie den einzelnen Scans zu. Die Unterlagen aus dem Vorbereitungsseminar sind ebenfalls beizulegen und kurz zu kommentieren.
- Bei den Messungen am Germanium tragen Sie die Messpunkte mit Unsicherheiten in ein Diagramm der Dispersionsrelation ein und vergleichen sie mit Literaturwerten. Erläutern sie auch welche Auswirkung die verschiedenen Scan-Typen auf das Messergebnis haben.

Am Ende noch ein Wort in eigener Sache: Es wäre sehr hilfreich, wenn Sie entweder schriftlich oder beim Kolloquium ein kurzes Feedback zu Durchführung, Betreuung und Vorbereitung geben könnten. Dies würde eine Verbesserung des Versuchs für kommende Generationen von Studenten ermöglichen.

P.S. Zeichenwerkzeug und Taschenrechner nicht vergessen.

6 Vortragsthemen zum Vorbereitungsseminar

Die folgenden Aufgabenstellungen sollen von jeder Gruppe in Form eines kurzen Vortrages (ca. 15 Minuten) bearbeitet werden. Die Vergabe der Themen findet bei der Anmeldung zum Versuch statt. Klären Sie bitte eventuelle Fragen vor dem Vorbereitungsseminar mit ihrem Betreuer. Er steht Ihnen gerne mit Rat und Tat zur Seite. Mit einem verständlichen und anschaulichen Vortrag tragen Sie in entscheidendem Maße zum Gelingen des Praktikumsversuches bei. Sie können dabei am besten beurteilen, wo Erklärungsbedarf besteht.

Thema 1: Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie und biologische Auswirkungen von Neutronenstrahlung

Materialien: „Biologische Wirkung von Strahlung“ [4]
<http://www.umweltdaten.de/utk/kapitel22/E-22-1-2.pdf>
§2 der Strahlenschutzverordnung „Dosisgrenzwerte“

Welche Wechselwirkungen treten bei Neutronen auf, wodurch wirken sie auf lebendes Gewebe? Erklären Sie kurz den Begriff „Äquivalentdosis“ und versuchen Sie Ihren Kommilitonen ein Gefühl für die verschiedenen Grenzwerte zu geben, indem Sie zum Beispiel die natürliche Strahlenbelastung mit der durch medizinische Diagnostik, Flugreisen oder Kernwaffentests hervorgerufenen vergleichen.

Thema 2: Germanium – relevante Eigenschaften, Strukturfaktor

Materialien: Ch. Kittel: *Festkörperphysik* SS.37,38 [10]
B.E. Warren: *X-Ray Diffraction* SS.31-34 [13]
Reziproke Gitterkarte eines sc-Gitters

Geben Sie einen kurzen Überblick über die Eigenschaften von Germanium. Gehen Sie dabei hauptsächlich auf die Kristallstruktur ein.

In dem Exzerpt aus „X-Ray Diffraction“ wird das reziproke Gitter von Zinkblende abgeleitet. Übernehmen Sie das Ergebnis (Gl. (3.15)), übertragen Sie es auf Germanium und skizzieren Sie die reziproke $[1\bar{1}0]$ Ebene. $F_{h,k,l}$ bezeichnet dabei den *Strukturfaktor*, der ein Maß für die Intensität der Reflexe darstellt.

Konstruieren Sie eine erste Brillouin-Zone.

Thema 3: Die lineare zweiatomige Kette

Materialien: Ashcroft, Mermin: *Festkörperphysik* SS.544 ff. [2]
Dransfeld, Kienle, Kalvius: *Physik 1* SS. 231 ff. [7]

Leiten Sie die Dispersionsrelation einer linearen Kette mit zweiatomiger Basis her. Was passiert bei gleichen Massen der beteiligten Atome? Wie äußert sich eine Dämpfung der Schwingung?

Thema 4: Monochromatisieren durch Bragg-Reflexion

Materialien: R. Currat: *Inelastic scattering using the TAS technique* SS. 132 ff.
(Entnommen aus [1])
B.Dorner: *Coherent Inelastic Neutron Scattering* SS. 10 ff. [6]

Erläutern Sie die Transmissionsfunktion eines Monochromators mit Mosaikspread unter der Verwendung von Kollimatoren. Das heißt, wie sehen die Impulse der gestreuten Neutronen aus, wenn ein „weißer“ Neutronenstrahl unter den gegebenen Vereinfachungen auf den Monochromator trifft. Erklären Sie qualitativ das Aussehen der Auflösungsfunktion eines Dreiachsenspektrometers

Thema 5: Simulation der Auflösungsfunktion

Materialien: Konfigurationsfiles mit den Parametern vom PUMA
Schritt für Schritt Anleitung

Ermitteln Sie die auflösungsbedingte Verbreiterung von Vanadumlinien für gegebene Spektrometerwinkel.

Zeichnen Sie die Auflösungsfunktion für verschiedene Punkte im Q - ω -Raum mit Hilfe der Software Rescal für Matlab. Experimentieren Sie mit verschiedenen Ausfallsenergien, um den Fall idealer Fokussierung bzw. maximaler Verbreiterung der beobachteten Peaks zu simulieren.

Literatur

- [1] Lecture notes on neutron scattering introductory course. to the second European Conference on Neutron Scattering (ECNS'99), Aug 1999.
- [2] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Festkörperphysik*. Oldenbourg, 2001.
- [3] B. N. Brockhouse and P. K. Iyengar. Normal modes of germanium by neutron spektrometry. *Phys. Rev.*, 111(3):747, Aug 1958.
- [4] R. A. Bundschuh. Biologische Wirkung von Strahlung. Vortrag im Seminar: Neutronen und deren Anwendung in Wissenschaft und Industrie (als Anlage beigefügt), 2002.
- [5] W. Demtröder. *Laserspektroskopie*, Kapitel 3 (Linienbreiten und Profile von Spektrallinien). Springer, 4. edition, 2000.
- [6] B. Dorner. *Coherent Inelastic Neutron Scattering in Lattice dynamics*. Springer-Verlag, 1982.
- [7] K. Dransfeld, P. Kienle, and G. M. Kalvius. *Physik I*, Kapitel 8. Oldenbourg, 8. edition, 1998.
- [8] H. Friedrich. *Theoretische Atomphysik*. Springer, 1990.
- [9] H. Ibach and H. Lüth. *Festkörperphysik, Einführung in die Grundlagen*. Springer-Verlag, 6. edition, 2002.
- [10] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, 10. edition, 1993.
- [11] G. Nillson and G. Nellin. Normal vibrations of germanium by neutron spektrometry. *Phys. Rev. B*, 3(2):364, Jan 1971.
- [12] G. Shirane, S. m. Shapiro, and J. M. Tranquada. *Neutron scattering with a triple-axis Spektrometer*. Oxford University Press, 2002.
- [13] B. E. Warren. *X-Ray Diffraction*. Dover Pub., 1990.
- [14] B. T. Willis, editor. *Chemical Applications of Thermal Neutron Scattering*. Oxford University Press, 1973.

Internetressourcen

<http://www.frm2.tum.de/puma/index.en.shtml>

Homepage von „das PUMA“

http://www.ill.fr/YellowBook/D19/help/act_table.htm

Aktivierungstabelle der wichtigsten Elemente mit Abklingzeiten und Kontaktdosen.

<http://www.ill.fr/tas/practical/Spurions.html>

Beschreibung unerwünschter Effekte (Spurions) bei Messungen mit einem Dreiachsenspektrometer

<http://www.ill.fr/tas/matlab/doc/>

Beschreibung der Matlab Module zur Auflösungssimulation und Scanauswertung.

<http://www.science-search.org/index/Chemistry/Elements/Germanium/>

Informationen zum Element Germanium (Sammlung)

<http://www.env-it.de/umweltdaten/>

Informationen des Bundesministerium für Natur, Umweltschutz und Reaktorsicherheit.

<http://www.umweltdaten.de/utk/kapitel22/E-22-1-2.pdf>

Abschätzung der natürlichen und zivilisatorischen Strahlenbelastung in der Bundesrepublik von 1999.