

# **Status und Zukunft der Neutronenstreuung in der Schweiz**

Ein Strategiepapier der Schweizerischen Gesellschaft für Neutronenstreuung (SGN/SSDN) zum Thema “Neutronenstreuung in der Schweiz - eine Strategie für die nächsten 15 Jahre”

Arbeitsgruppe:

Strukturelle und magnetische Anregungen: A. Furrer, PSI & ETHZ

Kristallographie: W. Steurer, ETHZ

Magnetismus - Strukturen: S. Decurtins, Universität Bern

Biologie: F. Winkler, PSI & ETHZ

Weiche Materie: P. Schurtenberger, Universität Freiburg (Koordination)

Materialwissenschaften: G. Kostorz, ETHZ

Dieser Bericht wurde von der Generalversammlung der SGN am 16. November 2001 einstimmig akzeptiert.

Villigen, Januar 2002

# Inhalt

Zusammenfassung .....	3
1. Wissenschaftliches Potential der Neutronenstreuung .....	5
2. Status der schweizerischen Nutzergemeinde.....	7
2.1 Zusammensetzung der Nutzergruppen.....	7
2.2 Multidisziplinarität.....	8
2.3 Intensität der Nutzung.....	8
2.4 Nutzung verschiedener Quellen .....	9
2.5 Nutzung von Instrumenttypen .....	10
2.6 Grösse und Struktur der Nutzergemeinde .....	10
2.7 Der finanzielle Umfang .....	11
3. Status und Nutzung der europäischen Neutronenquellen .....	12
3.1 Schweizer Spallationsquelle SINQ .....	12
3.2 Institut Laue-Langevin in Grenoble .....	16
3.3 Hahn-Meitner Institut in Berlin .....	17
3.4 Die gepulste Spallationsneutronenquelle ISIS .....	18
3.5 Projekte für Neutronenquellen der “dritten Generation” .....	18
4. Wissenschaftliche Aktivitäten: Strukturelle und magnetische Anregungen .....	20
4.1 Einleitung .....	20
4.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen in den letzten fünf Jahren .....	21
4.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen.....	24
4.4 Analyse und Empfehlungen.....	27
5. Wissenschaftliche Aktivitäten: Kristallographie .....	32
5.1 Einleitung .....	32
5.2 Aktivitäten schweizerischer Forschungsgruppen in den letzten fünf Jahren.....	32
5.3 Geplante Aktivitäten schweizerischer Forschungsgruppen.....	34
5.4 Schlussfolgerungen und Empfehlungen.....	35
6. Wissenschaftliche Aktivitäten: Magnetismus - Strukturen.....	37
6.1 Einleitung .....	37
6.2 Gegenwärtige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen .....	38
6.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen.....	39
6.4 Schlussbemerkungen .....	40
7. Wissenschaftliche Aktivitäten: Biologie .....	41
7.1 Einleitung .....	41
7.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen .....	41
7.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen.....	42
7.4 Schlussfolgerungen und Empfehlungen.....	42
8. Wissenschaftliche Aktivitäten: Weiche Materie .....	44
8.1 Einleitung .....	44
8.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen in den letzten fünf Jahren. ....	46
8.3 Zukünftige Entwicklung, Analyse und Empfehlungen .....	49
8.4 Fazit .....	50
9. Wissenschaftliche Aktivitäten: Materialwissenschaften.....	51
9.1 Einleitung .....	51
9.2 Wichtige Forschungsaktivitäten schweizerischer Gruppen in den letzten fünf Jahren.....	51
9.3 Künftige Entwicklung (Pläne schweizerischer Gruppen) .....	53
9.4 Anforderungen .....	54
10. Analyse und Empfehlungen.....	56

## **Zusammenfassung**

Das Ziel der Schrift ist es, den “status quo” der Schweizer Neutronenstreuung zu beschreiben und eine fundierte Prognose über die Entwicklung in den nächsten 10-15 Jahren abzugeben. In einer quantitative Analyse wird der 'aktuelle Stand' sowie die Situation der letzten 3-4 Jahre bezüglich der Schweizer Nutzung der schweizerischen Spallationsquelle SINQ sowie der wichtigsten externen Neutronenzentren (ILL, HMI, ISIS) dargestellt. Diese Neutronenquellen und die europäischen Projekte der dritten Generation Neutronenquellen (ESS, AUSTRON) werden kurz vorgestellt und im Hinblick auf ihre Relevanz für die schweizerischen Nutzer charakterisiert. Im Hauptteil der Schrift werden die wichtigsten aktuellen wissenschaftlichen Themenbereiche (Strukturelle und magnetische Anregungen, Kristallographie, Magnetismus-Strukturen, Biologie, weiche Materie, Materialwissenschaften) beschrieben sowie ein Ausblick auf die nächsten 10-15 Jahre gegeben. Die “Convenors” der einzelnen Fachgruppen haben hier die bisherigen und zukünftigen Neutronenbenutzer und ausgewiesene Experten auf den jeweiligen Gebieten nach ihrer Einschätzung befragt und diese zusammengetragen. Aus den einzelnen Gruppen werden einige aktuelle “Highlights” der Forschung knapp und präzise präsentiert.

Die Untersuchung hat gezeigt, dass die Schweiz eine relativ grosse und sehr aktive Nutzergemeinschaft besitzt. Allerdings beschränken sich deren Aktivitäten auf relativ wenige Forschungsbereiche, in denen die Neutronenstreuung in der Schweiz traditionell eine wichtige Rolle gespielt hat (Festkörperphysik, Materialwissenschaften und Kristallographie). Andere Bereiche wie die Biologie oder weiche Materie, die international einen wichtigen Teil der Nutzergemeinde ausmachen, sind entweder schwach vertreten oder erst gerade im Aufbau befindlich. Die Untersuchung hat jedoch gezeigt, dass in diesen Gebieten ein steigendes Interesse vorhanden ist und die SINQ hier katalytische Wirkung zeigt. Hier gilt ausserdem, dass sich durch die mit der durch die nächste Generation Quellen (European Spallation Source, ESS) abzeichnenden neuen Möglichkeiten ein grosses Wachstumspotential ergibt.

Eine weitere Aufgabe dieser Studie war es, die wichtigsten Eckdaten für neu zu konstruierende Instrumente an der ESS grob festzulegen. Auch Forderungen an die Probenumgebung wurden nicht zentral, sondern fachgruppenspezifisch behandelt. Hier wurden klare Anforderungen an die zukünftigen Anlagen erarbeitet, und es wird gezeigt, wie wichtig gerade neue und zum Teil extreme Probenumgebungen für die Zukunft der Neutronenstreuung sein werden.

Insgesamt können die von den verschiedenen Gruppen gemachten Aussagen über die zukünftige Nutzung von Neutronenquellen wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Bedeutung der SINQ als “home base” für schweizerische Forschergruppen ist unbestritten. Dies setzt jedoch voraus, dass diese auch in Zukunft durch gezielte Ausbauschritte gestärkt wird und das PSI entsprechend weiterhin in die SINQ investiert und sie langfristig als Projekt höchster Priorität behandelt.
- Es besteht nach wie vor ein grosser Bedarf an Strahlzeit am ILL. Aus unserer Sicht wird deshalb für das ILL klar eine Vertragsbeibehaltung im Rahmen der bisherigen Nutzung für mindestens 10 weitere Jahre befürwortet.
- Eine schweizerische Beteiligung an einer europäischen Neutronenquelle der dritten Generation ist unabdingbar. Die ESS ist dabei klar die Quelle der Wahl, und für sie kann eine starke Nutzung durch schweizerische Forschergruppen vorausgesagt werden. Wir beantragen deshalb dem Bundesamt für Bildung und Wissenschaft (BBW) eine angemessene schweizerische Beteiligung am Projekt ESS.

## 1. Wissenschaftliches Potential der Neutronenstreuung

Die Neutronenstreuung hat in der Vergangenheit herausragende Beiträge zum mikroskopischen Verständnis der Materie geliefert. Die Verleihung des Nobelpreises im Jahr 1994 für C. Shull and B. Brockhouse für ihre Pionierarbeiten im Bereich der elastischen und inelastischen Neutronenstreuung illustriert die Bedeutung der Neutronenstreuung für die wissenschaftliche Gemeinschaft. Die Neutronenstreuung hat nicht nur ein enormes Potential in der Untersuchung technisch wichtiger Materialien (Magnete, Supraleiter, Keramiken, Polymere, Flüssigkristalle etc.), sie ist auch eine ideale Charakterisierungsmethode für biologische Systeme und hat enorm zu unserem Wissen in vielen fundamentalen Bereichen wie Phasenübergänge, Magnetismus oder Quantenflüssigkeiten beigetragen. Das ausserordentliche wissenschaftliche Potential der Neutronenstreuung in der Forschung liegt nicht zuletzt in den physikalischen Eigenschaften des Neutrons selbst begründet:

- Die benutzten Neutronen besitzen Wellenlängen und Energien, die ideal den atomaren und molekularen Längenskalen und charakteristischen Energien in Festkörpern und Flüssigkeiten entsprechen. Damit kann die Frage nach der Position und der Bewegung der Atome in diesen Systemen beantwortet werden.
- Das magnetische Moment des Neutrons ermöglicht die Untersuchung magnetischer Materialien auf mikroskopischen Längenskalen.
- Verschiedene Isotope einer atomaren Spezies wechselwirken unterschiedlich mit Neutronen. Dadurch können in der Neutronenstreuung durch einen entsprechenden Isotopenaustausch gezielt einzelne Moleküle oder Teile von ihnen hervorgehoben und so auch komplexe Strukturen in Mehrkomponentensystemen entschlüsselt und deren strukturelle und dynamische Eigenschaften studiert werden. Diese Möglichkeit, den Kontrast auch bei leichten Atomen zu manipulieren, ist eine spezifische Eigenschaft der Neutronenstreuung. Dabei hat sich der grosse Kontrast zwischen Wasserstoff und Deuterium als besonders wichtiges Instrument in der Erforschung der strukturellen und dynamischen Eigenschaften komplexer Systeme in der Biologie, der Chemie oder den Materialwissenschaften mit Hilfe von Neutronen erwiesen.
- Neutronen können auch massive Proben leicht durchdringen. Diese hohe Durchdringungsfähigkeit ist ideal für eine zerstörungsfreie Werkstoffprüfung und die Untersuchung des Einflusses von externen Parametern und Feldern auf Materialien wie z.B. Temperatur, Druck, Scherung oder komplexe Strömungen.

Die Neutronenstreuung hat sich als wichtige Untersuchungsmethode in fast allen Bereichen der Erforschung der kondensierten Materie etabliert. Die grosse Palette an spezialisierten Instrumenten spiegelt dabei die enorme Breite der wissenschaftlichen

Fragestellungen wider. Ein entscheidender Punkt in einer erfolgreichen Anwendung der Neutronenstreuung liegt in der Stärke der zur Verfügung stehenden Neutronenquellen. Die Forschung mit Neutronen ist in den allermeisten Fällen intensitätslimitiert, und die wissenschaftliche Entwicklung ist deshalb stark an den Fortschritt im Bereich der Neutronenquellen gekoppelt. Die Verfügbarkeit von Hochflussreaktoren wie das ILL in Grenoble (Fluss  $\approx 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/sec) hat deshalb zu einer signifikanten Ausweitung der Anwendung der Neutronenstreuung in neue Wissenschaftsbereiche geführt, und eine ähnliche Entwicklung kann auch von den geplanten neuen Neutronenquellen der dritten Generation erwartet werden.

## 2. Status der schweizerischen Nutzergemeinde

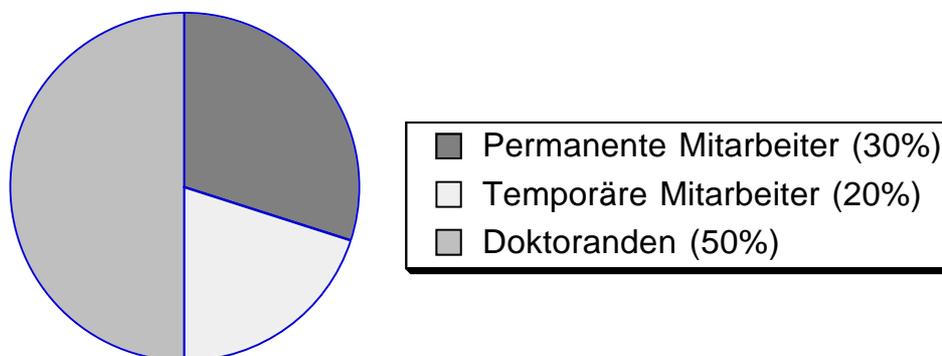
Im Jahre 1995 wurden die Neutronenstreu-Aktivitäten der in Europa tätigen Forscher von der European Neutron Scattering Association (ENSA) statistisch erfasst. Die Untersuchung zielte auf

- die wissenschaftliche und technische Basis der Neutronennutzer,
- den Umfang der Neutronenstrahlungsnutzung,
- die Art und Weise der Neutronenstrahlungsnutzung.

Die Untersuchung wurde in Form von Fragebögen durchgeführt und ergab detaillierte Informationen über die Breite, den Umfang und die Bedeutung der Neutronennutzung für die wissenschaftliche Gemeinschaft. Die Resultate wurden von der European Science Foundation (ESF Strasbourg) als Report "Survey of the Neutron Scattering Community and Facilities in Europe" publiziert, der auch auf den ESF-Internetseiten (<http://www.esf.org>) eingesehen werden kann.

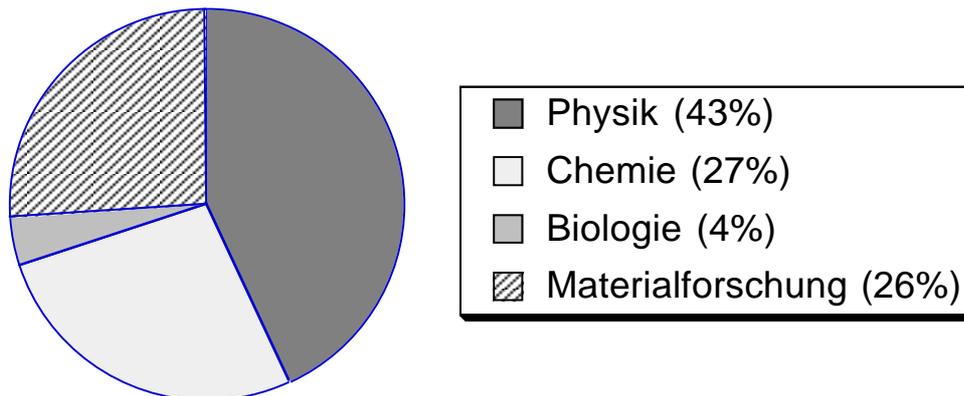
In der Schweiz wurden 52 Fragebögen an Forschungsgruppenleiter verteilt, wovon sich 34 der Angefragten (in deren Arbeitsgruppen insgesamt etwa 200 Wissenschaftler tätig waren) an der Umfrage beteiligten. Das entspricht einer Quote von 65% und darf deshalb als statistisch repräsentativ angesehen werden. Ein wesentliches Ergebnis der Umfrage war die Erkenntnis, dass sich die Struktur der Nutzergemeinden in den verschiedenen europäischen Ländern nur wenig unterscheidet. Wir gehen davon aus, dass sich die entsprechenden Zahlen in den letzten Jahren nur unwesentlich verändert haben und verzichten daher auf eine neue Untersuchung. Im folgenden wird das Ergebnis für die Schweiz zusammengefasst.

### 2.1 Zusammensetzung der Nutzergruppen



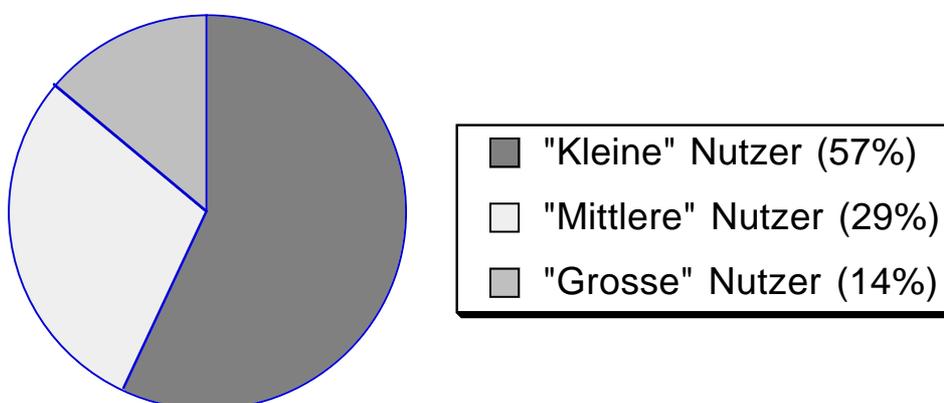
Rund die Hälfte der CH-Forscher, die Neutronenstreuexperimente durchführen, sind Doktoranden. Von den 20% temporär Angestellten sind die meisten Postdoktoranden. Das heisst: Neutronenstreuung ist eine experimentelle Methode, die zu zwei Dritteln von Nachwuchswissenschaftlern genutzt wird.

## 2.2 Multidisziplinarität



Knapp die Hälfte der Wissenschaftler, die Neutronenstreuung anwenden, kommt aus dem Bereich der Physik. Chemiker und Materialwissenschaftler sind ebenfalls gut repräsentiert. Es war zu erwarten, dass mit der Verfügbarkeit kalter Neutronen an der SINQ die Aktivitäten der Biologen sowie generell der Forscher auf dem Gebiet "soft condensed matter" in Zukunft zunehmen würde. Eine Zunahme der Experimente im Bereich der weichen Materie ist in der Tat eingetreten, und es sind neue Usergruppen hinzugekommen.

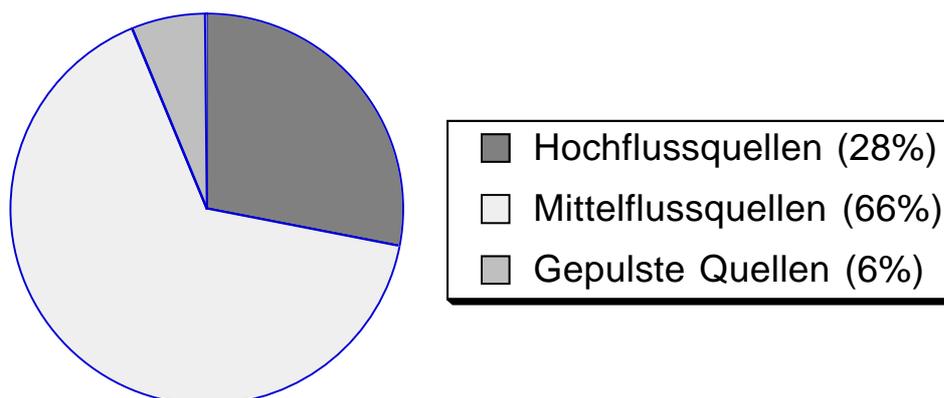
## 2.3 Intensität der Nutzung



Die Multidisziplinarität der Nutzung von Neutronen bedeutet auch, dass für verschiedene Wissenschaftler die Neutronenstreuexperimente von unterschiedlicher Bedeutung für ihre Forschungsarbeiten sind. Es gibt eine Kerngruppe (14%) von Forschern, die in der Schweiz im Umfeld der SINQ angesiedelt sind und dabei die Neutronen als fast ausschliessliche Experimentiertechnik verwenden. Für die sog. “mittleren” Nutzer (29%) ist die Neutronenstreuung ein wesentlicher Bestandteil ihrer Forschungsprogramme. Für die Mehrheit der Nutzer, die sog. “kleinen” Nutzer (57%) liefern Neutronenstreuexperimente relevante Mosaiksteine zu einem Gesamtforschungsprogramm.

Die grosse Zahl von “kleinen” Nutzern verlangt eine intensive Betreuung von Seiten der Instrumentenbetreiber an den Neutronenquellen. An der SINQ wird deshalb ein speziell darauf ausgerichtetes Nutzerprogramm angeboten.

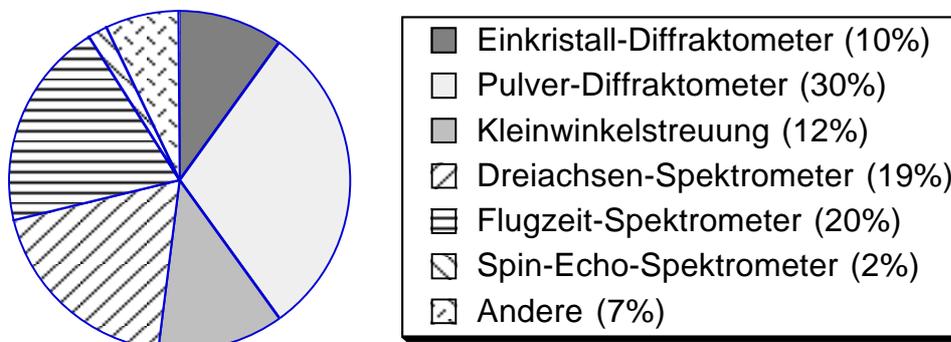
#### 2.4 Nutzung verschiedener Quellen



Die Verteilung der Neutronenmesstage (Mittelwerte der Jahre 1993-1995) auf verschiedene Quellentypen spiegelt im wesentlichen die Angebotssituation wider. Dank der wissenschaftlichen Partnerschaft der Schweiz mit dem ILL Grenoble entfällt etwas mehr als ein Viertel der totalen Strahlzeit auf den dortigen Hochflussreaktor. Bedenkt man den um eine Grössenordnung höheren Fluss im Vergleich zu Mittelflussquellen, so hat das ILL für die schweizerischen Neutronenstreuer eine herausragende Bedeutung. Mit 6% ist die Nutzung der gepulsten Spallationsquelle ISIS eher marginal. Etwa zwei Drittel und damit die Hauptlast der Experimente wird von den Mittelflussquellen getragen. Zum Zeitpunkt dieser Evaluation verfügte die Schweiz über keine “home base”; der Reaktor Saphir wurde im Jahre 1993 abgestellt, und die SINQ nahm ihren Betrieb erst im Jahre 1998 auf. Viele Experimente an Mittelflussquellen wurden deshalb an den Reaktoren in Berlin (Hahn-Meitner-Institut), Risø (National Laboratory) und Saclay (Laboratoire Léon Brillouin)

durchgeführt. Die Nutzung dieser Quellen war in den letzten Jahren stark rückläufig, denn ihre Funktion kann heute weitgehend von der SINQ übernommen werden.

### 2.5 Nutzung von Instrumenttypen



Methoden zur Strukturuntersuchung (Diffraktion, Kleinwinkelstreuung) haben etwa dasselbe Gewicht wie spektroskopische Techniken (Dreiachsen- und Flugzeit-Spektrometer). Die Position “Kleinwinkelstreuung” beinhaltet auch Experimente an Reflektometern. Die Position “Flugzeit-Spektrometer” ist nicht nach Energie und Auflösung (z.B. Höchstauflösung an Rückstreu-Spektrometern) aufgeschlüsselt. Die Position “Andere” umfasst Experimente mit polarisierten Neutronen, Radiographie und prompte Gammastrahl-Analyse.

Schlüsselt man diese Statistik nach Anzahl der durchgeführten Experimente auf, so ergibt sich ein deutlich anderes Bild. Wegen der meist längeren Messzeiten bei spektroskopischen Experimenten liegen hier die Pulverdiffraktions- und die Kleinwinkelstreuexperimente in Führung. Dies gilt auch für die Anzahl der Nutzer.

### 2.6 Grösse und Struktur der Nutzergemeinde

Die in den vorangehenden Abschnitten dargestellten Erhebungen machen die Multidisziplinarität der Nutzergemeinde deutlich. Darüberhinaus wurde eine breite Verteilung in der Nutzungstiefe der Neutronen festgestellt. Neutronennutzer sind an praktisch allen schweizerischen Hochschulen, am PSI sowie an einigen Industrieforschungslaboratorien zu finden. Heute sind jährlich etwa 150-200 schweizerische Wissenschaftler aktiv an Neutronenstreuexperimenten beteiligt; davon sind die Hälfte Doktoranden, die damit mit einer modernen experimentellen Methode der Festkörperforschung vertraut gemacht werden. Es ist zu erwarten, dass sich mit dem verbesserten Angebot an der SINQ (geplante Flusserhöhungen und Erweiterungen des Instrumentariums) sowie der Realisierung der ESS die

Neutronennutzergemeinde speziell in den sog. Wachstumsgebieten “Biologie” und “soft condensed matter” in Zukunft noch beträchtlich erweitern wird.

### *2.7 Der finanzielle Umfang*

Die für die Neutronenforschung in der Schweiz zur Verfügung gestellten Mittel können in zwei Kategorien aufgeteilt werden: (1) die direkt für die Neutronenproduktion respektive für den Zugang zum ILL aufgewendeten Mittel, und (2) die durch Nationalfonds, Universitäten und andere Organisationen zur Verfügung gestellten projektgebundenen Forschungsbeiträge.

In die erste Kategorie fallen die Kosten der SINQ (Infrastruktur (Beschleuniger, Spallationsquelle, Instrumente), Personalkosten, Overhead) von ca. 8.4 Mio Fr. pro Jahr. Damit werden pro Jahr ca. 200 Tage Strahlzeit produziert und zur Zeit 9 diffraktive Instrumente unterhalten. In die gleiche Kategorie fällt der Vertrag zwischen der Schweiz (BBW) und dem ILL, in dem die wissenschaftliche Mitgliedschaft der Schweiz (“scientific membership”) am ILL und einen (zur Zeit) Anteil von 3.5% an der Strahlzeit für eine Summe von rund 3.5 Mio Fr. pro Jahr geregelt wird. Über die durch projektbezogene Beiträge erfolgte Förderung der Neutronenstreuung gibt es keine gesicherten Zahlen, doch dürften diese nach einer Abschätzung basierend auf den wichtigsten Nutzergruppen in der Schweiz wohl etwa bei 0.5 - 1 Mio Fr. pro Jahr liegen.

### 3. Status und Nutzung der europäischen Neutronenquellen

Wir gehen hier nur auf die für die schweizerischen Nutzergruppen wichtigsten Neutronenquellen (SINQ, ILL, HMI, ISIS) ein. Daneben existieren weitere kleinere nationale Neutronenquellen (Jülich, Orphée, Risø (nicht mehr in Betrieb), ...), die jedoch insgesamt nur einen marginalen Stellenwert für die schweizerische Forschergemeinschaft haben oder hatten. Ausserdem stellen wir kurz die wichtigsten Projekte für neue Quellen vor.

#### 3.1 Schweizer Spallationsquelle SINQ

Im Dezember 1996 produzierte die Schweizer Spallationsquelle SINQ am Paul Scherrer Institut, Villigen, die ersten Neutronen. Der reguläre Nutzerbetrieb begann im Sommer 1998. Bei der SINQ handelt es sich um die weltweit einzige kontinuierliche Neutronen-Spallationsquelle (<http://sinq.web.psi.ch>). Sie wird gespeist von einem isochronen 590MeV-Protonen-Zyklotron getaktet mit einer Frequenz von 50MHz, dessen Protonenstrom 1800  $\mu\text{A}$  beträgt. Etwa 70% dieser Protonen erreichen das SINQ-Blei-Target, welches einen thermischen Neutronenfluss von z.Zt.  $1.1 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  generiert. Der weitere Ausbau des PSI-Protonenbeschleunigers auf ca. 3000  $\mu\text{A}$  sowie die geplante Inbetriebnahme eines Flüssigmetall-Targets ("Megapie-Projekt") lassen mittelfristig einen thermischen Fluss von ca.  $2.5 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  erwarten. Darüberhinaus wird der Einbau einer optimierten kalten Quelle mit sogenanntem "re-entrant hole" im Winter 2003 den Fluss kalter Neutronen oberhalb einer Wellenlänge von  $4\text{\AA}$  etwa um einen Faktor 2 erhöhen.

Die SINQ ist die erste und bislang einzige Neutronenquelle, deren Neutronenleiter – abgesehen von denen für das SANS-Instrument und das Reflektometer – konsequent mit Superspiegeln ( $m=2$ ) beschichtet wurden. Dementsprechend liegt das Schwergewicht der Instrumentierung auf dem Gebiet kalter Neutronen. Zur Zeit befinden sich an der SINQ neun diffraktive und sieben nicht diffraktive Instrumente im Nutzerbetrieb. Aus letzterer Gruppe sei an dieser Stelle nur die Radiographiestation "NEUTRA" erwähnt, die sich z.B. durch die Variabilität des Detektorsystems auszeichnet. Die diffraktiven Instrumente an der SINQ sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Es handelt sich um zwei Pulver- und ein Einkristalldiffraktometer, eine Kleinwinkelanlage, ein Reflektometer, ein Zweiachsen-Testinstrument, zwei Dreiachsen- und ein Flugzeitspektrometer.

Ein weiteres Diffraktometer ("POLDI") mit einer Ausrichtung auf materialwissenschaftliche Probleme wird zu Beginn des Jahres 2002 in Betrieb gehen. Die Projekte eines hochauflösenden Rückstreuспекrometers ("MARS") sowie eines thermischen Dreiachsenspektrometers ("TNT") werden in den nächsten drei Jahren realisiert (Tabelle 2).

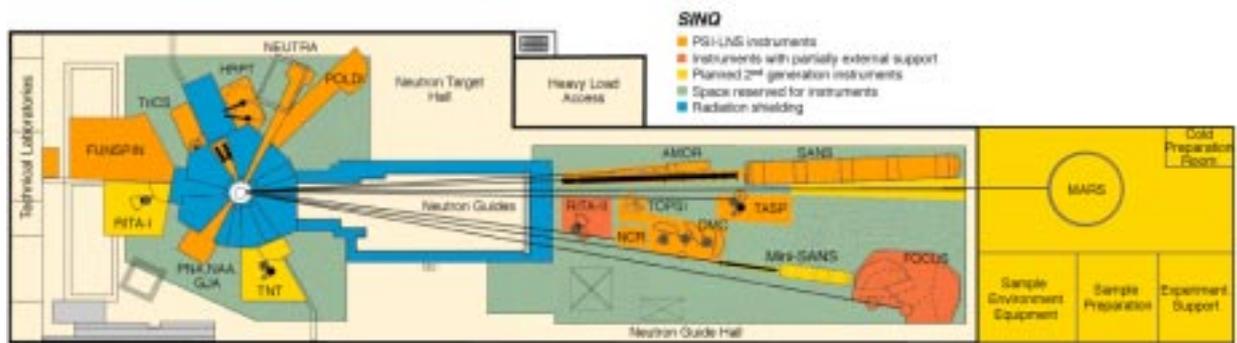


Abb. 1: Hallenplan der SINQ. Eingezeichnet sind bereits sämtliche drei Instrumente innerhalb der PSI-Risø Kooperation sowie die geplante Verlängerung der Leiterhalle.

Tab. 1: Zusammenstellung der diffraktiven Instrumente der SINQ im Nutzerbetrieb. Die mit (\*) markierten Geräte sind Teil der PSI-Risø Kooperation. (\*\*) FOCUS wird betrieben in einer Kooperation mit der Universität des Saarlandes, Deutschland.

Instrument	Typ	Neutronen
HRPT	hochauflösendes Pulverdiffraktometer	thermisch
TRICS	Einkristall-Diffraktometer	thermisch
DMC	Pulverdiffraktometer	kalt
RITA-II (*)	Dreiaachsen-Spektrometer	kalt
TASP	Dreiaachsen-Spektrometer	kalt
FOCUS (**)	Flugzeit-Spektrometer	kalt
SANS	Kleinwinkelstreuanlage	kalt
AMOR	Reflektometer	kalt
TOPSI	Zweiaachsen-Instrument (informelle Nutzung)	kalt

Anfangs 2001 kam eine Vereinbarung zwischen dem PSI und dem Risø National Laboratory, DK, zustande. Diese sieht neben einer engen wissenschaftlichen Kooperation auch die Installation und die gemeinsame Nutzung von drei früheren Risø-Instrumenten an der SINQ vor. Das erste dieser Instrumente, "RITA-II", ein kaltes Dreiaachsenspektrometer, ist bereits an der SINQ in Betrieb. Die Risø-Kleinwinkelanlage wird im Frühjahr 2002 folgen, ein weiteres Dreiaachsenspektrometer ("RITA-I") im shutdown 2003. Diese Instrumente werden gemeinsam betrieben und stehen jeweils zur Hälfte der dänischen sowie der SINQ-Nutzergemeinde zur Verfügung.

Tab. 2: Zusammenstellung der Projekte und der im Aufbau befindlichen diffraktiven Instrumente der SINQ im Nutzerbetrieb. Die mit (\*) markierten Geräte sind Teil der PSI-Risø-Kooperation.

Instrument	Typ	Neutronen
POLDI (2002)	TOF-Diffraktometer	thermisch
SANS-II (*, 2002)	Kleinwinkelstreuanlage	kalt
RITA-I (*, 2003)	Dreiaachsen-Spektrometer	kalt
MARS (2003)	Rückstreu-Spektrometer	kalt
TNT (2004)	Dreiaachsen-Spektrometer	thermisch

Ein weiterer Meilenstein in der Aufwertung des Nutzerprogramms wird die Anbindung der SINQ an das EU-Programm "Transnational Access to Research Infrastructures" sein. Das entsprechende proposal wurde von der EU-Kommission mit einer Zuwendung von €1.167.000,- für einen Zeitraum von zunächst 28 Monaten im Sommer 2001 akzeptiert. Wegen der noch ausstehenden Ratifizierung der bilateralen Verträge zwischen der EU und der Schweiz hat das "Bundesamt für Bildung und Wissenschaft, BBW" eine Zwischenfinanzierung des Programms bewilligt. Die Mittel werden vollständig dem Nutzerprogramm zugeführt und zu Beginn des Jahres 2002 zur Verfügung stehen.

Für die SINQ-Zyklen der Jahre 1999 – 2001 wurden durchschnittlich 100 neue proposals pro Jahr eingereicht. Von diesen proposals wurden im Mittel 67% akzeptiert. Bei durchschnittlich etwa vier Autoren pro proposal haben damit jährlich etwa 270 verschiedene Forscher von Resultaten, die an der SINQ entstanden sind, profitiert. Die untenstehende Tabelle 3 stellt einige wichtige Kennzahlen der SINQ-Nutzung aus den letzten drei Jahren zusammen.

Die Anzahl der Experimente ist von 1999 auf 2000 leicht angestiegen. Die Anzahl der Nutzer hingegen sowie deren Besuche hat sich etwa verdoppelt. Im Jahre 2001 standen wegen des verlängerten Jahres-Shutdowns sowie des zusätzlichen zweiwöchigen Shutdowns im August nur etwa 80% der sonst üblichen Messzeit zur Verfügung (\*).

Der Anteil der Schweizer SINQ-Nutzung liegt naturgemäss sehr hoch. Die mittlere Zahl der von Schweizer Nutzern beanspruchten Instrumenttage beträgt ca. 55% und unterliegt keiner signifikanten Tendenz nach oben oder unten. Weitere stark vertetene Länder sind Deutschland (20%) sowie Russland (7%).

Tab. 3: Statistische Kennzahlen der SINQ aus den letzten drei Jahren. Die Zahl der Besucher umfasst alle Messgäste eines Jahres, hier sind Mehrfachnennungen durch mehr als ein Experiment pro Jahr enthalten. Die Zahl der Nutzer ist hierauf korrigiert und gibt die Anzahl der verschiedenen Personen an, die die SINQ genutzt haben.

	<b>1999</b>	<b>2000</b>	<b>2001 (*)</b>
Anzahl proposals	95	105	100
Anzahl Experimente	149	175	122
Anzahl Instrumenttage	911	1024	652
Gesamtzahl Besucher	149	260	144
Gesamtzahl Nutzer	64	146	88
CH-Besucher	90 (60.4%)	140 (53.8%)	86 (59.7%)
CH-Instrumenttage	552 (60.6%)	530 (51.6%)	356 (54.6%)

Die Aufstellung der an der SINQ genutzten Instrumenttage nach Themengebieten zeigt Tab. 4. Man erkennt deutlich, dass der Schwerpunkt der an der SINQ durchgeführten Forschung auf dem Gebiet "Magnetismus" liegt. Weitere stark vertetene Gebiete sind "Supraleitung", "Stark korrelierte Elektronsysteme" und "Materialwissenschaften". Aus dem Gebiet der "Weichen Materie" sind Polymer- und Kolloidforschung zur Zeit noch schwach vertreten, die biologische Forschung spielt bislang fast keine Rolle.

Tab. 4: Instrumenttage an der SINQ aufgeschlüsselt nach Themengebieten.

<b>Sachgebiet</b>	<b>1999 Tage (%)</b>	<b>2000 Tage (%)</b>	<b>2001 Tage (%)</b>
Strongly Correlated Electron Systems	107 (11.8)	66 (6.4)	77 (11.8)
Quantum Spin Systems	35 (3.8)	46 (4.5)	24 (3.7)
Superconductivity	148 (16.3)	145 (14.2)	74 (11.3)
Structure	111 (12.1)	138 (13.5)	103 (15.8)
Dynamics	37 (4.1)	81 (7.9)	90 (13.8)
Magnetism	266 (29.2)	359 (35.1)	167 (25.6)
Materials Science	135 (14.8)	131 (12.8)	75 (11.5)
Polymers	26 (2.9)	15 (1.5)	18 (2.8)
Colloids	23 (2.5)	36 (3.5)	9 (1.4)
Biology	10 (1.1)	7 (0.6)	5 (0.8)
Others	13 (1.4)	0	10 (1.5)
Total	911 (100)	1024 (100)	652 (100)

### 3.2 Institut Laue-Langevin in Grenoble

Neben der SINQ ist das ILL in Grenoble wohl die wichtigste Neutronenquelle für die schweizerischen Forschergruppen (<http://www.ill.fr>). Dabei ist das ILL besonders wegen des hohen Neutronenflusses attraktiv, ist es doch bis auf weiteres weltweit die leistungsfähigste Anlage überhaupt. Der D<sub>2</sub>O-moderierte Reaktor erreicht bei einer Leistung von 57 MW einen Neutronenfluss von  $1.3 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Nach seiner Modernisierung im Jahre 1994 und dem Einbau eines neuen Schwerwassertanks kann man mit einer weiteren Lebensdauer von mindestens 20 Jahren rechnen. Er ist mit einer heissen, zwei kalten Quellen und zwei Neutronenleiterhallen ausgestattet, in denen insgesamt 28 Instrumente betrieben werden. Der Zugang zu allen Instrumenten ist via ein Proposalsystem geregelt, wobei den schweizerischen Nutzern über den Vertrag mit dem ILL ein Anteil von 3.5% der gesamten Strahlzeit zusteht. Dabei können jedoch nicht alle Instrumente zu 100% über Proposal genutzt werden, da diese zum Teil als sogenannte CRG Instrumente durch externe Betreibergruppen unterhalten werden.

Tab. 5: CH-Beteiligung am ILL, aufgeschlüsselt nach Colleges. Angegeben sind die bewilligten Messtage und die Prozentzahlen unter Berücksichtigung aller Länder

College	04/98 Tage (%)	10/98 Tage (%)	04/99 Tage (%)	10/99 Tage (%)	04/2000 Tage (%)	10/2000 Tage (%)	04/2001 Tage (%)	10/2001 Tage (%)
3	15.3 (3.9)	14.6 (3.4)	5.0 (1.4)	10 (2.3)		31.0 (14.4)	8.7 (2.2)	11.0 (2.9)
4	34.1 (11.8)	15.5 (3.8)	38.1 (12.6)	38.5 (11.6)	23.3 (10.0)	5.3 (2.8)	6.4 (2.2)	26.7 (7.3)
5a	15.7 (5.8)	5.0 (1.8)	6.0 (2.4)	22.2 (7.6)	8.0 (2.7)	12.0 (4.6)	28.8 (11.5)	13.8 (5.6)
5b	14.8 (3.8)	7.2 (1.6)	5.2 (1.4)	9.0 (2.3)	14.4 (3.3)	10.0 (3.1)	18.2 (4.5)	21.5 (4.2)
6	8.2 (4.3)		9.0 (4.1)		2.0 (1.0)		1.3 (0.8)	2.8 (1.1)
7	0	2.3 (1.9)	12.2 (5.8)	4.0 (1.8)	2.0 (0.9)	5.5 (2.0)	4.7 (2.8)	1.2 (0.5)
8	1.8 (0.8)						2.9 (1.3)	3.4 (1.8)
9	1.0 (0.6)	1.0 (0.6)		1.0 (0.5)		1.0 (0.6)	1.5 (0.9)	3.6 (1.8)
Total Halbjahr	90.0	45.6	75.5	74.7	49.7	64.8	73.3 (3.6)	82.2 (3.5)
Total		135.6 (3.1)		150.2 (3.3)		114.5 (3.0)		155.5 (3.5)

College 3: Nuclear and Particle Physics

College 4: Structural and Magnetic Excitations

College 5a: Crystallographic Structures

College 5b: Magnetic Structures

College 6: Structure and Dynamics of Liquids and Glasses

College 7: Materials Sciences, Surfaces and Spectroscopy

College 8: Biology

College 9: Structure and Dynamics of Soft-Condensed Matter

Bezüglich Vielseitigkeit, Leistung und Innovation stellen viele ILL Instrumente bisher Weltspitze dar. In den letzten Jahren wurde allerdings generell zu wenig in eine Modernisierung und Neubau von Instrumenten am ILL investiert. Es ist jedoch zu hoffen, dass im Rahmen des vom wissenschaftlichen Rat empfohlenen sogenannten "Millennium-Programmes" ein Schritt in die Zukunft getan wird. Auch wenn die Bedeutung der SINQ als "home base" für schweizerische Forschergruppen unbestritten ist, so besteht nach wie vor ein grosser Bedarf an Strahlzeit am ILL. Aus unserer Sicht wird deshalb für das ILL klar eine Vertragsbeibehaltung im Rahmen der bisherigen Nutzung befürwortet.

### 3.3 Hahn-Meitner Institut in Berlin

Der Forschungsreaktor BER-II ist ein Leichtwasserreaktor mit einer Leistung von 10 MW (<http://www.hmi.de/bensc>). Der Neutronenfluss beträgt  $1.1 \cdot 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Für die Nutzer stehen 8 mit kalten Neutronen betriebene Instrumente sowie sechs Diffraktometer und ein Dreiachsspektrometer zur Verfügung, die mit thermischen Neutronen betrieben werden. Eine Besonderheit des HMI sind die speziellen Probenumgebungen, die von tiefsten Temperaturen bis zu höchsten Magnetfeldern reichen und stetig weiterentwickelt werden. Am HMI ist die Nutzung durch schweizerische Forschergruppen in den letzten 4 Jahren kontinuierlich auf ein Viertel gesunken. Da die CH-Nutzer am HMI durchwegs auf Instrumenten experimentieren, die seit 1998 auch an der SINQ zur Verfügung stehen, ist dies wahrscheinlich ein echter "SINQ-Effekt". Eine Nutzung auf tieferem Niveau findet immer noch wegen der einzigartigen Probenumgebungen am HMI statt.

Tab. 6: Strahlzeitstatistik für CH-Forschergruppen am HMI.

<b>Disziplin</b>	<b>1997</b>	<b>1998</b>	<b>1999</b>	<b>2000</b>
Strukturelle und magn. Anregungen	47	38	28	10
Kristallographie				
Magnetismus	16	6	3	
Biologie				
Weiche Materie, Gläser und Flüssigkeiten				
Materialwissenschaften	4	12	8	7
Fundamentale Physik				
Total (Tage)	67	56	39	17

### *3.4 Die gepulste Spallationsneutronenquelle ISIS*

Die Neutronenquelle ISIS am Rutherford Appleton Laboratory in Didcot (England) ist die leistungsfähigste gepulste Spallationsneutronenquelle der Welt. Sie basiert auf einem Protonensynchrotron mit 200  $\mu\text{A}$  Stromstärke, welches kurze Pulse (0.4  $\mu\text{s}$ ) mit einer Frequenz von 50 Hz liefert. Der Fluss thermischer Neutronen pro Puls beträgt etwa  $10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s und ist damit vergleichbar mit dem stetigen Neutronenfluss am Hochflussreaktor des ILL Grenoble. Leider wird ISIS (hauptsächlich aus finanziellen Gründen) nur während 170 Tagen/Jahr betrieben. Für Neutronenstreuexperimente stehen der Nutzergemeinschaft 18 Instrumente zur Verfügung; dazu kommen noch 6 Instrumente für Myonen- und Neutrino-Experimente. Das Instrumentarium für Neutronenstreuung macht ausschliesslich Gebrauch von Flugzeitmethoden und ist damit weitgehend komplementär zu Instrumenten an stetigen Neutronenquellen. Weltweit einzigartige Möglichkeiten bestehen insbesondere auf dem Gebiet der Neutronenspektroskopie im epithermischen Neutronenbereich (Energien von 100 meV bis einige eV) sowie für höchst aufgelöste Diffraktionsuntersuchungen an polykristallinen Materialien. Für Details der Instrumentierung wird auf die ISIS-Internet-Seiten verwiesen (<http://www.isis.rl.ac.uk>). Momentan bestehen Pläne für den Aufbau einer zweiten Targetstation (10 Hz), welche wesentlich verbesserte Experimentiermöglichkeiten mit kalten Neutronen erbringen wird.

ISIS ist eine vorwiegend national finanzierte Neutronenquelle (80%); die restlichen 20% werden durch internationale Beteiligungen eingebracht. Für Forscher aus Nichtpartnerländern ist es deshalb äusserst schwierig, Strahlzeit bei ISIS zu erhalten. In den Jahren 1990-2000 haben etwa 50 Wissenschaftler von schweizerischen Forschungslaboratorien an ISIS experimentiert, welchen jährlich etwa 10-15 Tage Strahlzeit zugesprochen wurde, was einer Nutzungsquote von 0.5% entspricht.

### *3.5 Projekte für Neutronenquellen der "dritten Generation"*

In den frühen 90er Jahren hat das "Megascience Forum" der OECD die Situation der Neutronenquellen einer weltweiten Analyse unterzogen. Es wurde prognostiziert, dass auf Grund der Altersstruktur ab dem Jahre 2015 nur noch etwa ein Viertel der heute für Neutronenstreuexperimente betriebenen Neutronenquellen verfügbar sein würden und demzufolge dringender Handlungsbedarf für die Realisierung neuer Neutronenquellen besteht. Es wurde empfohlen, in den drei Regionen Europa, Amerika und Japan den Bau neuer Neutronenquellen der "dritten Generation" (d.h. Quellen mit einem Neutronenfluss, der die heute leistungsfähigsten Neutronenquellen um mindestens eine Grössenordnung übertrifft) voranzutreiben. Inzwischen ist in den USA das Projekt SNS (Oak Ridge) finanziert worden und dürfte im Jahre 2005 fertiggestellt sein. In Japan wird ein ähnliches Projekt im Jahre 2002 gestartet.

In Europa wurde im Jahre 1994 eine multinationale Studie unter Beteiligung von 7 europäischen Ländern und 12 Forschungsinstitutionen für die Realisierung einer Europäischen Spallationsneutronenquelle (ESS) begonnen. Diese Machbarkeits-Studie wurde im Jahre 1997 mit der Publikation eines dreibändigen Berichts abgeschlossen. In der Folge wurde die ESS-Studie im Rahmen eines von 14 Forschungslaboratorien aus 9 europäischen Ländern unterzeichneten "Memorandum of Understanding" vertieft. Bis zum Jahr 2003 sollen die Grundlagen für einen Realisierungsentscheid vorliegen. Es ist das Ziel, die ESS so auszulegen, dass sie für alle Experimentklassen weltweit führend sein wird. Die Hauptkomponenten der ESS sind:

- Beschleuniger: LINAC mit 5 MW Leistung (d.h. 25-mal mehr als ISIS).
- Kompressorring: dient der Herstellung von 1  $\mu$ s-Pulsen.
- Target: es sind 2 Targetstationen für die Neutronenproduktion geplant: Eine 50 Hz Targetstation ("short pulse") mit Ankopplung an den Kompressorring, eine 16.67 Hz Targetstation ("long pulse" mit Pulslängen von der Grössenordnung ms) mit Ankopplung an den LINAC. Die "long pulse" Targetstation ersetzt die früher verfolgte Variante einer 10 Hz Targetstation (am Kompressorring angekoppelt) und hat bedeutende Intensitätsvorteile für "breitbandige" Instrumente (z.B. Kleinwinkelstreuung, "spin-echo" Methoden).
- Instrumentierung: Entwicklung neuartiger Instrumente, die den extrem hohen Neutronenpulsen angepasst sind und zu völlig neuen Anwendungen führen werden.

Falls im Jahre 2003 die Finanzierung der ESS gesichert und ihr Standort geklärt ist, könnte die ESS ab ca. 2010 in Betrieb gehen. Für weitere Details wird auf die ESS-Internet-Seiten verwiesen (<http://www.ess-europe.de>).

Parallel zur ESS versucht zur Zeit die österreichische Regierung, europäische Partner für das Projekt der Spallationsneutronenquelle AUSTRON zu gewinnen. Das Konzept von AUSTRON basiert auf einem Beschleuniger mit Strahlleistung 0.5 MW und 10 Hz Pulsfrequenz und übertrifft damit die Leistung der für ISIS geplanten 10 Hz Targetstation um eine Grössenordnung. AUSTRON wird somit für Experimente mit kalten Neutronen eine ausserordentlich leistungsfähige Quelle sein. Nach Sicherstellung der Finanzierung von AUSTRON kann mit einer Betriebsaufnahme innerhalb von 6-8 Jahren gerechnet werden.

## 4. Wissenschaftliche Aktivitäten: Strukturelle und magnetische Anregungen

### 4.1 Einleitung

Die enorme Bedeutung der inelastischen Neutronenstreuung zur Untersuchung struktureller und magnetischer Anregungen basiert auf folgenden Fakten:

- Die Neutronenstreuung überdeckt den relevanten  $(\mathbf{q},\omega)$ -Bereich in idealer Weise, insbesondere für den Bereich thermischer und ganz speziell kalter Neutronen. Die Spezialität der Neutronenstreuung liegt darin, dass die dynamischen Grössen  $\mathbf{q}$  und  $\omega$  zur vollständigen Abdeckung der Brillouinzone unabhängig voneinander gewählt werden können (im Gegensatz z.B. zu optischen Methoden, die entweder nur das Zonenzentrum oder den Zonenrand ansteuern können). Die charakteristischen Strukturfaktortermine im differentiellen Wirkungsquerschnitt erlauben es zudem, die beobachteten Anregungen in der Regel eindeutig einem bestimmten Streuphänomen zuzuordnen (z.B. Magnonen/Phononen).
- Mit polarisierten Neutronen können verschiedene Streuphänomene eindeutig unterschieden werden, z.B. magnetische/nicht-magnetische Streuung, kohärente/inkohärente Streuung. Mittels dreidimensionaler Polarisationsanalyse können die Anisotropie magnetischer Phänomene sowie magneto-elastische Wechselwirkungen zudem sehr detailliert untersucht werden. Mit heutigen Neutronenquellen sind inelastische Streuexperimente mit polarisierten Neutronen allerdings stark intensitätslimitiert.
- Die wenigsten Neutronenstreuexperimente werden unter Normalbedingungen durchgeführt. Gefragt sind Untersuchungen bei extremen Temperaturen, hohen Magnetfeldern und hohen (uniaxialen oder hydrostatischen) Drucken. Dank dem grossen Eindringvermögen von Neutronen in Materie sind Neutronenstreuexperimente unter extremen Bedingungen relativ leicht durchführbar.
- Neutronenstreuung ist – im Gegensatz zu X-ray Synchrotronstrahlung – sensitiv auf Isotopeneffekte (z.B. H/D/T).
- Bei vielen Neutronenstreuexperimenten ist eine gute instrumentelle Auflösung im Impuls- und/oder Energieraum  $(d\mathbf{q},d\omega)$  unabdingbar. Eine Verbesserung der instrumentellen Auflösung geht immer zu Lasten des Neutronenflusses, ist also intensitätslimitiert. Bezüglich  $d\mathbf{q}$  sind Neutronenexperimente X-ray Synchrotronexperimenten in der Regel um eine Grössenordnung unterlegen. Bezüglich  $d\omega$  muss der Energiebereich betrachtet werden: Neutronen sind im

kalten und sub-thermischen Energiebereich X-ray Synchrotronstrahlen eindeutig überlegen, während im (epi-)thermischen Energiebereich X-ray Synchrotronstrahlen klare Vorteile haben.

Aus der obigen Darstellung geht klar hervor, dass die inelastische Neutronenstreuung wohl definierte Anwendungsfenster hat, die es zu nutzen gilt. Bei vielen Fragestellungen ist die kombinierte Verwendung von Neutronen und X-ray Synchrotronstrahlen jedoch unerlässlich.

## *4.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen in den letzten fünf Jahren*

### *4.2.1 Stark korrelierte Elektronensysteme inkl. Hochtemperatur-Supraleiter*

Es wurden viele Seltene Erden (R) enthaltende Hochtemperatur-Supraleiter vorwiegend der Typen YBCO:  $Y_{1-x}R_xBa_2Cu_3O_{6+x}$  ( $0 < x < 1$ ), LSCO:  $La_{2-x-y}Sr_xR_yCuO_4$  ( $0 < x < 0.2$ ;  $0 < y < 0.05$ ) und  $(Pr,Nd)_{2-x}Ce_xCuO_4$  ( $0 < x < 0.2$ ) hinsichtlich der Kristallfeld-Wechselwirkung untersucht. Die Seltenen Erden sind in diesen Verbindungen zwischen den supraleitenden  $CuO_2$ -Ebenen eingebaut und dienen als lokale Sonde für Struktur- und Ladungseffekte, welche sich direkt im Kristallfeldpotential manifestieren. So konnten beispielsweise der inhomogene Charakter der supraleitenden Materialien sowie deren dotierungsabhängiges Verhalten eindeutig nachgewiesen werden (perkolative Supraleitung). In jüngerer Zeit wurde das Relaxationsverhalten der Kristallfeldanregungen untersucht, woraus Informationen über die Pseudogaptemperatur  $T^*$  resultierten. Insbesondere konnten starke Sauerstoff- und Kupfer-Isotopeneffekte für  $T^*$  nachgewiesen werden. Alle diese Untersuchungen sind intensitätskritisch (genaue Bestimmung von Linienbreiten, kleine Konzentration der Seltenen Erden) und brauchten den hohen Fluss am ILL (IN5, IN6). Mit der Inbetriebnahme des Flugzeitspektrometers FOCUS waren derartige Messungen neuerdings auch an der SINQ möglich.

Für Kuprate vom Typ YBCO mit  $R=Eu,Sm$  wurden auch Intermultiplett-Kristallfeld-Untersuchungen durchgeführt, welche zusätzliche Informationen über das Kristallfeldpotential liefern. Wegen der Grösse der Multiplettstände (in der Regel  $>100$  meV) erfolgte die Mehrzahl dieser Experimente an der gepulsten Spallationsneutronenquelle ISIS (HET, MARI).

Von grossem Interesse sind nach wie vor Untersuchungen an Kupferoxyd-Perovskiten mit der "anomalen" Seltenen Erde Pr, welche die Supraleitung unterdrückt; diesbezüglich konnten relevante Unterschiede in den Tiefenergie-Anregungsspektren von  $Pb_2Sr_2Pr_{1-x}Ca_xCu_3O_8$  und  $Y(Pr)BCO$  aufgezeigt werden.

An Einkristallen von  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (leicht unterdotiert,  $T_c=70$  K) wurden am ILL (IN8) Untersuchungen des magnetischen “Resonanzpeaks” durchgeführt, welcher bei einer Energie von 34 meV beobachtet wurde, auch oberhalb der kritischen Temperatur noch existiert und erst bei der Pseudogaptemperatur  $T^*$  verschwindet.

An Einkristallen von  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $0 < x < 0.2$ ) wurden an der SINQ (Dreiaachsen-Spektrometer DrüchLa) weiche Phononenmoden beim Phasenübergang tetragonal  $\rightarrow$  orthorhombisch untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass die kritischen Exponenten des Ordnungsparameters stark von der Dotierung abhängen; dieses Phänomen ist momentan noch unverstanden.

Es wurden systematische Untersuchungen der Kristallfeldwechselwirkung an Seltenerd-haltigen Manganaten und Nickelaten, die starke Kopplungen zwischen Spin-, Gitter- und Elektronen-Freiheitsgraden zeigen, durchgeführt. Die beiden Verbindungsklassen interessieren hinsichtlich des grossen Magnetowiderstandes (Manganate) und des Metall-Isolator-Überganges (Nickelate). Bei den Nickelaten ist der Metall-Isolator-Übergang zudem mit einem strukturellen Phasenübergang rhomboedrisch  $\rightarrow$  orthorhombisch verknüpft, der einen ausgeprägten barokalorischen Effekt zeigt und für druckinduzierte adiabatische Kühlmethode genutzt werden kann.

#### 4.2.2 Quanten-Spinsysteme

$S=1/2$  Quanten-Spinsysteme zeigen einen Reichtum an physikalischen Eigenschaften, die vom strukturellen Aufbau (Spinketten, Spinleitern, Dimerisierung) der magnetischen Ionen bestimmt werden. Insbesondere werden heute Systeme mit gekoppelten Spinketten intensiv untersucht, wobei das magnetische Anregungsspektrum charakteristisch von der Zahl  $z$  der gekoppelten Spinketten abhängt (z.B. Existenz einer Anregungslücke für gerade  $z$ ).

Die magnetischen Anregungsspektren der  $S=1/2$  Quanten-Spinsysteme  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$ , in welchen die Cu-Spins als Dimere eingebaut sind, wurden in allen Hauptsymmetrie-Richtungen des reziproken Raumes vollständig ausgemessen (ILL: IN8, IN14, IN22; HMI: V2; SINQ: TASP & DrüchLa) und konnten im Rahmen eines RPA-Modells quantitativ erklärt werden. Das Anregungsspektrum dieser Verbindungen zeigt eine Energielücke mit Singulett-Triplett-Charakter, die sich durch Anlegen eines äusseren Magnetfeldes verkleinert und bei einem kritischen Magnetfeld  $H_c$  verschwindet (quantenkritischer Punkt “QCP”). Die theoretischen Vorstellungen des magnetischen Anregungsspektrums am QCP sind noch nicht gefestigt und verlangen nach experimentellen Daten. Erste Untersuchungen an  $\text{TlCuCl}_3$  für  $H > H_c$  (HMI) zeigen, dass das Anregungsspektrum nicht vollständig mit konventionellen Modellen erklärt werden kann.

Von grossem Interesse sind löcherdotierte Spinleitersysteme, weil durch Dotierung mit Löchern Supraleitung induziert werden kann, was von einer japanischen Gruppe erstmals für die Verbindung  $\text{Sr}_{0.4}\text{Ca}_{13.6}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41.84}$  beobachtet wurde ( $T_c=12$  K, allerdings nur bei hohen Drucken  $p>3$  GPa). An  $\text{Sr}_{0.73}\text{CuO}_2$  (mit Spinketten) durchgeführte inelastische Neutronenstreuexperimente (ISIS: HET; ILL: IN5) zeigten, dass die Dotierung (in diesem Fall Sr-Unterstöchiometrie) zu alternierenden Austauschkopplungen entlang der Spinketten und damit zu einer Dimerisierung der Cu-Spins führen, welche aber nicht wie in  $\text{CuGeO}_3$  auf einem Spin-Peierls-Übergang, sondern auf der Existenz kombinierter Spin- und Ladungsdichtewellen beruht.

#### 4.2.3 Spin-Cluster und molekulare Nanomagnete

Spin-Cluster (mit einer kleinen Zahl magnetischer Ionen) sind wohl definierte magnetische Systeme, deren Eigenschaften exakt berechnet werden können. Dabei können insbesondere die existierenden Modelle für die Austauschwechselwirkung (Heisenberg, Ising, XY, Tensorcharakter) eindeutig überprüft werden. Entsprechende Neutronenstreuexperimente mit magnetischen Ionen der Übergangsmetall- und Seltenerd-Reihen wurden vor mehr als 20 Jahren als Pionierarbeiten begonnen (hauptsächlich am ILL mittels IN5 & IN6) und konsequent weitergeführt, wobei interessante Informationen über die Natur der Austauschwechselwirkung resultierten. In neuerer Zeit haben Spin-Cluster-Systeme eine Renaissance erfahren, weil komplexere Spin-Cluster wie z.B.  $\text{Mn}_{12}$ -Azetat und  $\text{Fe}_8\text{Br}$  neuartige Phänomene (langsames magnetisches Tunnelling, Hysterese-Effekte) zeigen, die für Anwendungen relevant sind.

Spin-Cluster spielen eine zentrale Rolle auf dem Gebiet des molekularen Magnetismus, wobei das Engineering von Magneten, deren Wirkung auf den Eigenschaften magnetischer Einzelmoleküle oder molekularer Nanomagnete beruht, im Vordergrund steht. Erste Experimente in dieser Richtung wurden am ILL (IN5 & IN6), ISIS (IRIS), HMI (V3) und SINQ (FOCUS) begonnen. Solche Experimente sind wegen der oft kleinen Probenmenge und dem Mangel an ausreichend deuterierten Proben (Preisfrage!) äusserst schwierig (d.h. intensitätslimitiert).

#### 4.2.4 Intermetallische Verbindungen

$\text{Ni}_2\text{MnGa}$  ist die einzige Heusler-Legierung, die einen martensitischen Phasenübergang unterhalb der Curietemperatur zeigt. Beim martensitischen Phasenübergang konnte das Weichwerden eines transversalen Phononenmodes bei  $\xi=q/q_{\text{max}}=1/3$  beobachtet werden (normalerweise geschieht dies im Zonenzentrum oder am Zonenrand). Die damit zusammenhängenden magneto-elastischen Wechselwirkungen eröffnen interessante Anwendungen als Form-Gedächtnis-Material, wobei das Anlegen eines Magnetfeldes riesige Längenänderungen von bis zu 5% bewirkt.

#### *4.2.5 Nanokristalline Metalle*

Die Eigenschaften nanokristalliner Materialien werden weitgehend durch die Eigenschaften der Korngrenzen bestimmt. Insbesondere gab es schon lange Hinweise auf eine erhöhte Zustandsdichte niederenergetischer Phononen in den Korngrenzen. Dieser Befund konnte erstmals an nanokristallinem Pd (mit Wasserstoffdotierung der Grenzflächen) mittels Neutronen-Flugzeitmessungen und Polarisationsanalyse eindeutig nachgewiesen werden.

#### *4.2.6 Wasserstoffdiffusion und Ionenleitung*

Im Hinblick auf die Entwicklung von (leichten) Wasserstoffspeichern und Festkörper-Batterien sind Untersuchungen von Diffusionsphänomenen nach wie vor von grossem Interesse, wobei die quasielastische Neutronenstreuung detaillierte Informationen über die Diffusionsmechanismen liefert. Entsprechende Untersuchungen zur Wasserstoffdiffusion in Metallen (Nb-Einkristall) resp. zur Sauerstoffdiffusion in  $\text{La}_2\text{Mo}_2\text{O}_9$  wurden am ILL (IN14) resp. an der SINQ (FOCUS) durchgeführt, wobei insbesondere die korrelierte Diffusion (kohärente quasielastische Streuung) der H(D)- resp. O-Atome auf Grund mangelnder Leerstellen interessierte. Die Ionenleitung von Lithium in  $\text{Li}_2\text{S}$  konnte zusätzlich durch Untersuchung des "Schmelzens" charakteristischer Phononenäste im Detail verstanden werden.

#### *4.2.7 Dynamik von Molekülgruppen*

Die Dynamik von  $\text{NH}_3$ -Gruppen in Molekülkristallen lässt Rückschlüsse auf das lokale Potential im Festkörper zu. Für  $\text{Mg}(\text{NH}_3)_2\text{Cl}_2$  gaben Experimente an der SINQ (FOCUS) Evidenz für die Existenz gekoppelter  $\text{NH}_3$ -Rotoren. Ähnliche Untersuchungen an  $\text{Zn}(\text{NH}_3)_4\text{I}_2$  gaben Hinweise auf eine symmetriebedingte Unordnung der  $\text{NH}_3$ -Moleküle.

### *4.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen*

#### *4.3.1 Stark korrelierte Elektronensysteme inkl. Hochtemperatur-Supraleiter*

Die in Kap. 4.2.1 beschriebenen Untersuchungen des Relaxationsverhaltens von Kristallfeldanregungen in Seltenerd-haltigen Hoch- $T_c$  Supraleitern werden im Hinblick auf die Ermittlung der Isotopen- und Dotierungsabhängigkeit der Pseudogaptemperatur  $T^*$  weitergeführt. Die Konzentration der Seltenerd-Ionen wird in den untersuchten Verbindungen gering sein, damit störende Relaxationsmechanismen (z.B. magnetische Austauschwechselwirkung) weitgehend

ausgeschaltet werden können, d.h. diese Experimente sind dann ausgeprägt intensitätskritisch.

Eine der grössten Herausforderungen auf dem Gebiet der Hoch- $T_c$  Supraleitung liegt im vollständigen Verständnis des auf  $T=0$  K extrapolierten Normalzustandes; das ist eine notwendige Bedingung zum Verständnis des Paarungsmechanismus. Um diesen Bereich des Phasendiagramms erreichen zu können, braucht man zur Unterdrückung der Supraleitung extrem hohe Magnetfelder ( $H > 50$  T). Die Anregungsspektren von YBCO, LSCO, etc. sollen unter diesen Bedingungen systematisch untersucht werden, insbesondere auch als Funktion des Dotierungsgrades sowie unter Anlegen hoher Drucke  $p > 5$  MPa (zur gezielten Modifikation der physikalischen Eigenschaften). Da die Austauschkopplung der Cu-Spins in Kupraten sehr gross ist ( $J \approx 100$  meV), sind die Experimente mit sehr guter  $q$ -Auflösung im Bereich (epi-)thermischer Neutronen durchzuführen. Die Analyse der Cu-Anregungsspektren basiert heute auf sehr einfachen Modellen (Heisenberg-Austausch-Wechselwirkung nächster und übernächster Nachbarn); genauere Messungen werden detailliertere Analysen erlauben (z.B. die Frage nach der Existenz von zyklischen Vier-Spin-Wechselwirkungen in den  $\text{CuO}_2$ -Plaketten, in Analogie zum supraflüssigen Helium).

In Kap. 4.2.1 erwähnte Untersuchungen von Intermultiplett-Übergängen in Seltenerd-Verbindungen werden an Bedeutung zunehmen. Sie liefern beispielsweise Informationen über unbesetzte 5d Zustände und deren Wechselwirkung mit den 4f Zuständen der Seltenen Erden, welche zum tieferen Verständnis von Superaustausch-Wechselwirkungen und Fluoreszenzprozessen in Seltenerd-haltigen Lasern beitragen. Solche Neutronenstreuexperimente haben gegenüber Synchrotron UV- und VUV-Spektroskopie den Vorteil, dass die relevanten Informationen direkt aus den Daten ableitbar sind.

An Neutronenquellen der dritten Generation sollten auch Untersuchungen elektronischer Zustandsdichten in stark korrelierten Elektronensystemen möglich sein. Diese sind heute nur mit der Methode der Photoemission messbar, welche allerdings äusserst oberflächensensitiv ist; mit den Neutronen (im Energiebereich von 0.2 bis 10 eV) würde man über eine ideale Volumenprobe verfügen.

#### 4.3.2 *Quanten-Spinsysteme*

Die bisherigen Untersuchungen an Quanten-Spinsystemen werden weitergeführt und auf neuere Verbindungen (Trimer- & Tetramersysteme) sowie dotierte Leitersysteme ausgedehnt, deren Phasendiagramme als Funktion äusserer Parameter ( $T$ ,  $H$ ,  $p$ ) zu bestimmen sind. Die bisherigen Erfahrungen haben gezeigt, dass eine eindeutige Beschreibung der Anregungsspektren nur dann möglich ist, wenn die Messdaten den irreduziblen Teil der Brillouinzone möglichst vollständig überdecken. Komplette  $(\mathbf{q}, \omega)$ -Datensätze können effizient mit Flugzeitspektrometern erhalten werden,

während konventionelle Dreiachsenspektrometrie dann zum Zug kommt, wenn z.B. kritische Eigenschaften bei festem  $\mathbf{q}$  untersucht werden. Magneto-elastische Wechselwirkungen sind für ein grundlegendes Verständnis von Quanten-Spinsystemen essentiell und erfordern unabdingbar die Verwendung der (dreidimensionalen) Polarisationsanalyse.

#### *4.3.3 Spin-Cluster und molekulare Nanomagnete*

Die in Kap. 4.2.3 beschriebenen Untersuchungen an Spin-Clustern werden weitergeführt. Die Komplexität (d.h. die Zahl der involvierten Spins im Cluster) der interessierenden Systeme wird zunehmend grösser werden, so dass die Anzahl der magnetischen Zustände pro Energieintervall bedeutend ansteigt. Eine eindeutige Charakterisierung des magnetischen Anregungsspektrums ist deshalb nur mit verbesserter Energieauflösung (einige  $\mu\text{eV}$  für Energieüberträge bis 10 meV) möglich sein.

#### *4.3.4 Intermetallische Verbindungen*

Eine Weiterführung der in Kap. 4.2.4 beschriebenen Experimente an  $\text{Ni}_2\text{MnGa}$  und verwandten Verbindungen soll Aufschluss über die Natur und Wirkung der magneto-elastischen Wechselwirkungen geben.

Im weiteren sind druckabhängige Untersuchungen der Anregungsspektren von Seltenerd-haltigen intermetallischen Verbindungen geplant im Hinblick auf die Suche nach Materialien mit ausgesprochenem barokalorischem Effekt (zur adiabatischen, druckinduzierten Kühlung).

Für verschiedene Seltenerd-haltige Verbindungen wurde die Existenz von Spin-Wechselwirkungen höherer Ordnung (z.B. Quadrupol-Wechselwirkungen) in Modellrechnungen postuliert. Quadrupolanregungen haben sehr kleine Übergangswahrscheinlichkeiten (ca. 1% eines Dipolüberganges) und wurden deshalb in Neutronenstreuuntersuchungen noch nie beobachtet, könnten aber mit einer Höchstflussquelle experimentell nachgewiesen werden.

#### *4.3.5 Nanokristalline Metalle*

Die in Kap. 4.2.5 beschriebenen Untersuchungen von Schwingungszuständen in nanokristallinen Metallen sollen von kubisch flächenzentrierten Systemen (z.B. Pd) auf kubisch raumzentrierte Systeme erweitert werden, da die Korngrenzen eine sehr unterschiedliche Struktur haben. Die neuen Experimente sollen in einem zu kleineren Energien ( $<0.5$  meV) erweiterten Bereich mit Polarisationsanalyse durchgeführt werden, was an heutigen Instrumenten (ILL: D7) nicht möglich ist. Der Einsatz eines  $^3\text{He}$ -Spinanalysators würde die Messzeiten nachhaltig verkürzen.

#### *4.3.6 Wasserstoffdiffusion und Ionenleitung*

Die Wasserstoffdiffusion in metallischen Speichermaterialien ist hinreichend gut verstanden, so dass sich momentan keine neuen Experimente aufdrängen. Das könnte sich jedoch ändern, falls neue, leichtere Wasserstoffspeicher auf dem "Markt" erscheinen. Im Gegensatz dazu wird das Interesse an der Sauerstoffdiffusion im Hinblick auf die erstarkten Aktivitäten auf dem Gebiet der Brennstoffzellen zunehmen. Hier wird es nötig sein, an Materialien wie  $\text{La}_2\text{Mo}_2\text{O}_9$  *in situ* Untersuchungen an ganzen Zellen durchzuführen, was entsprechende Investitionen in die Probenumgebung verlangt.

#### *4.3.7 Dynamik von Molekülgruppen*

Dieser Problemkreis ist nach wie vor aktuell und wird insbesondere auf detaillierte Studien der Temperatur- und Druckabhängigkeit ausgedehnt werden.

#### *4.3.8 Dünne Filme*

Bis heute haben sich Neutronenuntersuchungen an dünnen Filmen und Oberflächen im wesentlichen auf Reflektometrie (und in wenigen Fällen auf Diffraktometrie mit Zählraten von ein paar Counts/Minute) beschränkt. Neutronenspektroskopie an Oberflächen, die mittels Molekularstrahlepitaxie oder Laser-Ablation perfekt hergestellt werden können, ist ganz klar eine Experimentklasse, die nur an Neutronenquellen der dritten Generation durchführbar ist. Neutronenspektroskopische Untersuchungen der elementaren Anregungen in Oberflächen sind Schlüsselexperimente zur Überprüfung bestehender Modelle über die subtilen Wechselwirkungen zwischen Spin-, Gitter- und Elektron-Freiheitsgraden in zweidimensionalen Systemen. Ausserdem lassen sich in dünnen Filmen durch geeignete Wahl der Substrate intrinsisch hohe Drucke im Mbar-Bereich erzeugen, so dass völlig neue zweidimensionale Strukturen (mit neuen physikalischen Eigenschaften) hergestellt werden können.

### *4.4 Analyse und Empfehlungen*

#### *4.4.1 Einleitende Bemerkungen*

Die zukünftigen Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen auf dem Gebiet der strukturellen und magnetischen Anregungen umfassen das ganze Spektrum von "heute machbar" bis "heute unmöglich machbar". Entsprechend wird die Spallationsneutronenquelle SINQ am PSI Villigen auch in Zukunft eine wichtige Rolle als "home base" spielen. Längerfristig ist der Zugang zu einer (gepulsten Spallations-)Neutronenquelle der dritten Generation mit einem Spitzenfluss, der den

heute weltbesten Neutronenquellen (ILL, ISIS) um ca. zwei Grössenordnungen überlegen ist, anzustreben. Im Klartext heisst das "ja" zur schweizerischen Beteiligung am Projekt der Europäischen Spallationsneutronenquelle ESS.

#### *4.4.2 Geplante Experimente schweizerischer Forschergruppen an SINQ, ILL, ISIS, ESS*

Die in Kap. 4.3 aufgeführten Experimente lassen sich wie folgt realisieren:

*Experimente, die weiterhin an der SINQ möglich sind:*

- Kap. 4.3.1: Kristallfelduntersuchungen in Seltenerd-haltigen Hoch- $T_c$  Supraleitern mit nicht zu kleiner Seltenerd-Konzentration;
- Kap. 4.3.2: Magnetische Anregungen in Quanten-Spinsystemen bei festem  $Q$  und verschiedenen äusseren Parametern ( $T$ ,  $H$ , ...);
- Kap. 4.3.3: Untersuchungen an nicht zu komplexen Spin-Clustern;
- Kap. 4.3.4: Untersuchung weicher Phononenmodes in Heusler- und verwandten Legierungen sowie magnetischer Anregungsspektren in Seltenerd-haltigen intermetallischen Verbindungen;
- Kap. 4.3.6: Wasserstoff- resp. Sauerstoff-Diffusion in Metallhydriden resp. Brennstoffzellen;
- Kap. 4.3.7: Dynamik von Molekülgruppen im kalten und (sub-)thermischen Energiebereich.

*Experimente, die bis zur Inbetriebnahme der ESS den hohen Fluss des ILL benötigen:*

- Kap. 4.3.1: Magnetische Anregungsspektren in Kupraten (Kristallvolumen  $\approx 1 \text{ cm}^3$ );
- Kap. 4.3.2: Magnetische Anregungen in Quanten-Spinsystemen bei festem  $Q$  mit (dreidimensionaler) Polarisationsanalyse;
- Kap. 4.3.3: Untersuchungen an Spin-Clustern mittlerer Komplexität;
- Kap. 4.3.5: Schwingungszustände geeigneter nanokristalliner Metalle mit verbesserter Polarisationsanalyse ( $^3\text{He}$ -Spinfilter);
- Kap. 4.3.6: *In situ* Untersuchungen der Sauerstoffdiffusion in Brennstoffzellen.
- Kap. 4.3.7: Dynamik von Molekülgruppen im kalten und thermischen Energiebereich.

*Experimente, die bis zur Inbetriebnahme der ESS an ISIS durchgeführt werden sollten:*

- Kap. 4.3.1: Intermultiplett-Spektroskopie in Seltenerd-Verbindungen;
- Kap. 4.3.2: Komplette  $(Q, \omega)$ -Datensätze für die magnetischen Anregungen in Quanten-Spinsystemen bei verschiedenen äusseren Parametern ( $T$ ,  $H$ , ...);
- Kap. 4.3.3: Untersuchungen von Spin-Clustern im (epi-)thermischen Energiebereich;
- Kap. 4.3.7: Dynamik von Molekülgruppen im (epi-)thermischen Energiebereich.

*Experimente, die nur an der ESS realisierbar sind:*

- Kap. 4.3.1: Kristallfelduntersuchungen in Seltenerd-haltigen Hoch-T<sub>c</sub> Supraleitern mit geringer Seltenerd-Konzentration; magnetische Anregungsspektren in Kupraten; elektronische Zustandsdichten stark korrelierter Elektronensysteme;
- Kap. 4.3.2: Komplette (Q,ω)-Datensätze mit Polarisationsanalyse für die magnetischen Anregungen in Quanten-Spinsystemen;
- Kap. 4.3.3: Untersuchungen an komplexen Spin-Clustern;
- Kap. 4.3.4: Quadrupolanregungen in intermetallischen Seltenerd-Verbindungen;
- Kap. 4.3.5: Schwingungszustände in nanokristallinen Metallen mit Polarisationsanalyse (<sup>3</sup>He-Spinfilter);
- Kap. 4.3.6: *Real time* und *in situ* Untersuchungen der Wasserstoff- resp. Sauerstoff-Diffusion in Metallhydriden resp. Brennstoffzellen;
- Kap. 4.3.7: Dynamik von Molekülgruppen im (epi-)thermischen Energiebereich;
- Kap. 4.3.8: Neutronenspektroskopie an Oberflächen dünner Filme.

#### 4.4.3 Intensität der Nutzung von Neutronenquellen

Die erwartete Intensität der Nutzung von Neutronenquellen durch schweizerische Forschergruppen ist in der nachfolgenden Tabelle zusammengestellt, wobei der Nutzungsgrad wie folgt angegeben wird: x: kleine, xx: mittlere, xxx: grosse Nutzung.

Kap.	SINQ	ILL	ISIS	ESS
4.3.1	xx	x	x	xxx
4.3.2	xx	xx	xx	xxx
4.3.3	xx	xxx	x	xxx
4.3.4	xxx			x
4.3.5	x	xx		xxx
4.3.6	xxx	x		xx
4.3.7	xxx	x	x	x
4.3.8				xxx

Die Tabelle kann wie folgt interpretiert werden:

- Die Bedeutung der SINQ als “home base” für schweizerische Forschergruppen ist unbestritten.
- Es besteht nach wie vor ein grosser Bedarf an Strahlzeit am ILL.
- Der Bedarf an Strahlzeit bei ISIS ist weiterhin eher marginal, was hauptsächlich auf das Fehlen einer vertraglich (und finanziell) geregelten Nutzung durch schweizerische Forschergruppen zurückzuführen ist. Mit der Inbetriebnahme der ESS wird das Interesse an ISIS ganz verschwinden.

- Für die ESS kann eine starke Nutzung durch schweizerische Forschergruppen vorausgesagt werden.

#### 4.4.4 Spezifische Anforderungen an die Instrumente für Neutronenstreuung

##### SINQ:

- Die Realisierung des Dreiachsenspektrometers TNT für thermische Neutronen ist zwingend.
- Es soll eine zeitverzugslose Realisierung des Rückstreuspektrometers MARS angestrebt werden, weil es einen neuen Energiebereich ( $\mu\text{eV}$ ) erschliessen und bei Energieüberträgen von 2-10 meV eine um eine Grössenordnung bessere Energieauflösung als bisher möglich erbringen wird.

##### ILL:

- Das ILL plant in den nächsten Jahren – zusätzlich zum gegenwärtigen “Millennium-Programm” – substantielle Investitionen in Instrumente und Infrastruktur. Dabei werden insbesondere neutronenoptische Elemente implementiert, die für viele Instrumente zu einem bedeutenden Flussgewinn führen werden.

##### ISIS:

- ISIS hat seit jeher sein Instrumentarium stetig erweitert und verbessert. Als neueste Entwicklung ist beispielsweise das Spektrometer MAPS zu erwähnen, welches für die Untersuchung struktureller und magnetischer Anregungen einen grossen  $(q, \omega)$ -Bereich simultan abdeckt. Mit der Realisierung des Projektes ISIS-2 (10 Hz-Targetstation) könnten insbesondere die Instrumente im Bereich kalter Neutronen bedeutende Flussgewinne erzielen (durch bessere Ankopplung der kalten Moderatoren).

##### ESS:

- Viele geplante Aktivitäten verlangen extreme Probenumgebungen, die nur an einer gepulsten Spallationsneutronenquelle möglich sind, z.B.
  - (Gepulste) Magnetfelder bis 50 T (zeitlich in Phase mit der Neutronenquelle);
  - Hohe Drucke von 100 kbar bis (gepulst) 1 Mbar (Geometrie mit fixem Streuwinkel).
- Die Instrumente für Neutronenstreuung sind als *System* mit der extremen Probenumgebung zu konzipieren.
- Es gibt vermehrt Experimente mit (dreidimensionaler) Polarisationsanalyse. Für Neutronenspektroskopie ist das nur an einer Neutronenquelle der dritten Generation sinnvoll machbar. Dazu sind die breitbandigen Neutronenpolarisatoren ( $^3\text{He}$ -Spinfilter, polarisierende Supermirrors) weiterzuentwickeln.

- Für Neutronenspektroskopie mit (epi-)thermischen Neutronen ist auf eine sehr gute Auflösung im Impulsraum ( $d\mathbf{q}$ ) zu achten, damit steile Äste der Dispersion elementarer Anregungen genügend genau ausgemessen werden können.
- Für Neutronenspektroskopie mit kalten Neutronen ist auf eine sehr gute Energieauflösung ( $d\omega$ ) zu achten (Auflösung von 2-20  $\mu\text{eV}$  für Energieüberträge von 2-10 meV), damit energetisch wenig separierte Anregungen (z.B. in Spinclustern) vollständig aufgelöst werden können. Für diese Applikation wäre die Weiterentwicklung des seinerzeit für die SINQ begonnenen Projekts PASTIS (höchstauflösendes Flugzeitspektrometer mit Phasenraum-Transformator) angezeigt.

## 5. Wissenschaftliche Aktivitäten: Kristallographie

### 5.1 Einleitung

Im Zentrum kristallographischer Forschung steht die Frage nach der Art der Selbstorganisation der Materie auf atomare Ebene. Das Ziel ist zu verstehen, welche Kristallstrukturen sich bei gegebener chemischer Zusammensetzung bilden, und wie die physikalischen Eigenschaften von der Kristallstruktur abhängen. Kristallographische Forschung ist stark interdisziplinär, sie beschäftigt sich mit strukturbezogenen Problemen in allen naturwissenschaftlichen Disziplinen. Untersuchte Materialien reichen dabei von intermetallischen Phasen über supramolekulare Strukturen bis zu Viren.

Kristallographie im engeren Sinn verstanden, beschäftigt sich mit der Untersuchung von Kristallstrukturen sowie deren Veränderung unter Einwirkung äusserer Einflüsse wie Temperatur, Druck, elektrische und magnetische Felder etc., mit oder ohne Zeitauflösung. Klassische elastische Neutronen-Strukturforschung an ein- und polykristallinen Materialien wird dabei zunehmend von Methoden, die Synchrotronstrahlung verwenden, abgelöst.

Es gibt jedoch nach wie vor auch in diesem Bereich sehr interessante Fragen, die nur mit Neutronenstreuung untersucht werden können. Das sind z.B. die Fälle, in denen leichte Elemente (z.B. Wasserstoff) neben schweren Elementen (z.B. Seltene Erden) vorliegen, komplizierte Magnetstrukturen aufgeklärt werden müssen, atomare Auslenkungsparameter mit sehr hoher Genauigkeit berechnet werden sollen, Streukontrastvariation zur Strukturlösung verwendet werden muss, und vor allem die Fälle, in denen die Probenumgebung (spezielle Kryostaten, Öfen, Druckzellen etc.) für Röntgenstrahlung nicht genügend transparent ist.

### 5.2 Aktivitäten schweizerischer Forschungsgruppen in den letzten fünf Jahren

Neutronenstreuexperimente zur Beantwortung kristallographischer Fragestellungen wurden von Forschern an fast allen schweizerischen Hochschulen durchgeführt, wobei in den verschiedenen Fachgebieten folgende Arbeitsgruppen besonders aktiv waren.

*Diffractionsgruppe Fischer (LNS ETHZ & PSI):* Systematische Einkristall-Neutronendiffraktionsuntersuchungen an Natrium-Nitrosylprussid und ähnlichen Verbindungen mit langlebigen metastabilen angeregten Zuständen werden bereits seit mehreren Jahren mit geeigneter Laserlichtbestrahlung bei tiefen Temperaturen an SINQ, LLB und ILL von J. Schefer et al. durchgeführt, um die Strukturänderungen gegenüber dem Grundzustand zu bestimmen. Diese Systeme haben ein grosses

Potential in Bezug auf holographische Datenspeicherung mit sehr hoher Dichte. Im Gegensatz zur Synchrotron-Röntgendiffraktion sind thermische Neutronen hier wegen ihrer geringen Energie ideale Sonden, da sie nicht zu signifikanten Strukturänderungen der Proben durch die Bestrahlung führen. Ferner eignet sich die Neutronenbeugung auch zur genauen Lokalisierung leichter Atome bei der aktuellen Klasse aperiodischer Festkörper wie  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ , die vom LNS an der SINQ untersucht wurden. Mit hochauflösender Neutronen-Pulverdiffraktometrie (vor allem zur präzisen Lokalisierung von C und N) wurde die anomale Temperaturabhängigkeit der chemischen Struktur der ebenfalls optisch interessanten Verbindung  $\text{K}_2\text{Na}[\text{Ag}(\text{CN})_2]_3$  bestimmt.

*Gruppe Güdel (Univ. Bern):* Auf dem Gebiet der anorganischen und physikalischen Chemie wurde Neutronenstreuung einerseits zur Positionsbestimmung leichter Atome, vor allem Wasserstoff (Deuterium), und andererseits für Untersuchungen in speziellen Probenumgebungen (hohe/tiefe Temperatur, Magnetfeld, Druck) verwendet. a) Die Wasserstoffpositionen in deuteriertem  $\text{NH}_4\text{CuCl}_3$  wurden für verschiedene Temperaturen zwischen 300 K und 1.5 K bestimmt. b) Die strukturelle Phasenumwandlung in  $\text{Cs}_3\text{M}_2\text{I}_9$  mit  $\text{M}=\text{Er}$  und  $\text{Y}$  wurde zwischen 200 K und 1.5 K untersucht. Beide Untersuchungen wurden in Zusammenarbeit mit dem Labor für Neutronenstreuung am PSI durchgeführt. Für die Untersuchung unter b) waren ausserdem hochaufgelöste Messungen am ILL sowie Synchrotronmessungen am BNL nötig.

*Gruppe Kunz (ETH Zürich):* Auf dem Gebiet der Erdwissenschaften ermöglichte die Neutronenstreuung die Ermittlung folgender Daten: a) Komplementäre Strukturparameter zu  $\text{Ca}(\text{Ti,P})\text{O}_5$ . Essentiell zur Lösung einer äusserst ungewöhnlichen Verbindung mit Ordnung/Unordnungsphänomen zwischen  $\text{TiO}_6$  Oktaedern und  $\text{PO}_4$  Tetraedern (HFBR, Brookhaven). b) Komplementäre strukturelle Daten zu OH-haltigen Mg-Silikaten. Beitrag zum Verständnis der Kristallchemie von potentiellen Wasserträgern im Erdmantel (ORNL, ILL). c) Tieftemperatur Phasendiagramm von  $\text{Ba}(\text{OH})_2$  (ILL). Entdeckung und Bestimmung neuer Phasen. Beitrag zum Verständnis der Evolution von Wasserstoffbindungen als Funktion von Temperatur, Druck und chemischer Zusammensetzung.

*Gruppe Schwarzenbach (Univ. Lausanne):* Auf dem Gebiet der Kristallographie wurden Neutronenstrahlen als Komplement zu Röntgenstrahlen für die Berechnung exakter Elektronendichten eingesetzt. a) Thermische Bewegung von  $\text{K}_2\text{PtCl}_6$  als Funktion der Temperatur, mit der nachgewiesen wurde, dass diverse Bestimmungen der Elektronendichte samt Orbitalpopulationen in Wahrheit nur anharmonische Effekte sind (PSI). b) Untersuchungen an Ammonium Azid Einkristallen (ILL) im Rahmen eines sogenannten 'X-N' Elektronendichteprojekts.

*Gruppe Steurer (ETH-Zürich):* a) Untersuchung von strukturellen und magnetischen Ordnungserscheinungen an hunderten von intermetallischen Phasen mit Pulver- und Einkristallmethoden (ILL, Saclay, PSI), b) Hochtemperatur-Pulverdiffraktometrie an Quasikristallen (PSI), b) Quasielastische Neutronenstreuung als Funktion der Temperatur zur Untersuchung von *phason flips* (TOF, Saclay).

*Gruppe Yvon (Univ. Genf):* Neutronenbeugung für kristallchemische Studien an Metallhydriden und zum besseren Verständnis der Metall-Wasserstoff Wechselwirkung im Festkörper. Synthese und strukturelle Charakterisierung einer grossen Zahl neuer salzartiger, metallischer und komplexer Metallhydride, darunter 'Rekordsubstanzen' bezüglich Wasserstoffspeicherkapazität wie z.B.  $\text{Mg}_2\text{FeH}_6$  (doppelt so hohe Volumskapazität wie flüssiger Wasserstoff) und  $\text{BaReH}_9$  (höhere molare Wasserstoffkonzentration,  $\text{H/M}=4.5$ , als Methan  $\text{H/C}=4$ ). Von besonderem Interesse (und besonders schwierig wegen der extrem hohen Neutronenabsorption) waren die Untersuchungen an Kadmium und Europium haltigen Metallhydriden (SINQ, ILL), von denen es bis vor kurzem noch keine zuverlässigen Strukturdaten gab.

### 5.3 Geplante Aktivitäten schweizerischer Forschungsgruppen

Wie erwartet, stellen viele der zukünftig geplanten schweizerischen Neutronenstreuaktivitäten mit kristallographischer Fragestellung eine Weiterführung existierender Projekte dar. Dazu gehören insbesondere die Untersuchung neuer Materialien von Interesse für die Supraleitung (ETHZ, Univ. Genève) oder Wasserstoffspeicherung (Univ. Fribourg, Univ. Genève), und neue Verbindungsklassen wie z.B. jene mit Kohlenstoff-Nanoröhren und Fullerenen (Univ. Fribourg). Eine genauere Analyse zeigt jedoch, dass auf dem Gebiet der Strukturforschung mit einer Weiterentwicklung, Verschiebung und Vertiefung der Aktivitäten zu rechnen ist. So werden insbesondere Studien in Abhängigkeit von äusseren Einflüssen (z.B. Temperatur, Druck und Magnetfeld) im Vordergrund stehen, sowie systematische Studien (z.B. in Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung), *in-situ* Studien (z.B. Ladungs und Entladungsphänomene von Wasserstoffspeichern), und zeitaufgelöste Studien (z.B. chemische Reaktionen und Phasenumwandlungen). Dabei werden immer höhere Anforderungen an die Qualität der Diffraktionsexperimente gestellt werden. Insbesondere für die Erforschung von Korrelationen zwischen strukturellen Parametern und physikalisch-chemischen Eigenschaften wird die erforderliche Präzision der Strukturparameter (z.B. Besetzungsfaktoren, Gitterverzerrungen, statische oder dynamische Auslenkungsparameter) zunehmen. Dies wird natürlich auch höhere Anforderungen an die Probenqualität stellen. Es erscheint aber, dass in Grenzfällen letztere leichter zu erfüllen ist als neue Instrumente hoher Auflösung zu konstruieren. Mit anderen Worten, nur ein hochauflösendes Gerät motiviert den Forscher, die nötige Arbeit in die Erhöhung der Probenqualität zu stecken (was in multinären Systemen viel

schwieriger ist als in binären und ternären Systemen). Sicher ist auch, dass die Zahl der untersuchten multinären Systeme wachsen wird (es wurden z.B. bis jetzt nur 1% aller möglichen quaternären Metallsysteme untersucht), dass für immer höher auflösende Messungen immer kleinere Probenmengen zur Verfügung stehen werden, und dass die Komplexität der Strukturen (vor allem bei multinären Verbindungen) zunehmen wird. Die Entwicklung von Quellen und Instrumenten muss daher weiter gehen, und zwar *bevor* sich die absolute Notwendigkeit dazu einstellt. Dies gilt auch für die Methodik. Strukturen werden in Zukunft an polykristallinen Proben in Anwesenheit von mehreren Phasen gelöst werden müssen, und Simultanverfeinerungen von Kristallstrukturen mittels Neutronen und Synchrotronstrahlung werden Standard.

#### 5.4 Schlussfolgerungen und Empfehlungen

Die Zahl der aktiven Neutronenstreuer in der Schweiz auf dem Gebiet der Kristallographie und deren Bedarf an Messzeit wird vermutlich weiter ansteigen. Die derzeitig zur Verfügung stehenden Neutronenquellen (vor allem SINQ und ILL) und deren Instrumente sind komplementär.

ILL : Für viele Studien, wie z.B. jene höchster Auflösung an stark absorbierenden Substanzen oder mit kleinsten Probenmengen ist der hohe Neutronenfluss am ILL weiterhin unverzichtbar, auch wenn zukünftig mehr Studien an die SINQ verlagert werden können. Die Kristallographen befürworten daher die Vertragsbeibehaltung mit dem ILL basierend auf einer 3.5% Nutzung der Schweiz. Dies setzt allerdings voraus, dass das vom wissenschaftlichem Rat des ILL empfohlene "Millennium-Programm" auch zeitgerecht verwirklicht wird. Ohne diese Verbesserungen würde das ILL für die Schweizer Strukturforscher längerfristig an Interesse verlieren.

SINQ : Wird als 'home base' für die Schweizer Kristallographen weiterhin an Wichtigkeit gewinnen. Die Bedingungen an dieser Quelle haben sich in letzter Zeit erheblich verbessert. Trotzdem ist ein weiterer Ausbau, auch hinsichtlich der Instrumente und der Probenumgebung, wünschenswert. Zahlreiche bisher zurückgestellte Untersuchungen könnten durch folgenden Massnahmen an der SINQ ermöglicht werden:

Weitere Erhöhung des Neutronenflusses, um auch kleinere Kristalle ( $< 1\text{mm}^3$ , z. B. für Hochdruckexperimente oder lichtempfindliche Systeme) untersuchen zu können bzw. schwache Streuphänomene besser detektieren zu können.

Ausbau der Probenumgebung für einen möglichst grossen Temperatur- und Druckbereich ( $0.01\text{K} < T < 3000\text{K}$ ,  $p > 50\text{GPa}$ ), für starke magnetische ( $H > 15\text{T}$ ) und elektrische Felder, für Laserlicht-Bestrahlung etc.

Einkristalldiffraktometer, ausgestattet mit schnellen Flächendetektoren (Image Plate, CCD) mit flexibler, ausgereifter (!) Auswerte-Software (Rekonstruktion des reziproken Raums) für die Untersuchung von Kristallstruktur und Ordnungserscheinungen metallischer, anorganischer und organischer Materialien sowie ihre Veränderung als Funktion äusserer Felder. Messung von Braggreflexen und diffuser Streuung (Dynamikbereich sechs bis zehn Grössenordnungen) soll auch an kleinen Kristallen und zeitaufgelöst möglich sein. Das Manko bereits bestehender Geräte mit Flächendetektoren an ISIS und ILL ist die Software zur Datenauswertung.

ESS : Infolge der hervorragenden Eigenschaften dieser Quelle der sogenannten "dritten Generation" (siehe 3.5) befürworten die Kristallographen eine Beteiligung der Schweiz an der Planung (z.B. Targetentwicklung), am Bau und am Betrieb dieser Quelle, falls nötig, auch auf Kosten eines längerfristigen Ersatzes des ILL. Die ESS sollte auf jeden Fall AUSTRON vorgezogen werden, falls dies zur Diskussion steht.

## 6. Wissenschaftliche Aktivitäten: Magnetismus - Strukturen

### 6.1 Einleitung

Die Naturwissenschaften und insbesondere die Chemie haben in den letzten Jahren die Darstellung von neuen molekularen Verbindungen in Form von kristallinen Festkörpern mit einer Vielzahl von Eigenschaften erfolgreich vorangetrieben. Diese synthetischen Produkte finden u. a. Anwendungen in Bereichen der Elektronik, Optik, Diagnostik etc

Eine zentrale Rolle in diesem wissenschaftlichen Umfeld spielen der Magnetismus und die Untersuchung der magnetischen Strukturen der neuartigen Materialien. In der Konsequenz ist festzuhalten, dass dabei die Neutronenstreuung (elastisch, inelastisch und polarisiert) die zentrale Methode darstellt um die Grundlagenforschung und die angewandte Materialforschung auf diesem Gebiet des Magnetismus erfolgreich angehen zu können.

Die Methode der Neutronenstreuung zur Aufklärung magnetischer Strukturen wurde schon auf Tausende metallischer, isolierender, molekularer und schichtartiger Systeme angewandt. Zusammenfassend können die erzielten Resultate wie folgt charakterisiert werden:

- Alle Detailinformationen bzgl. magnetischer Strukturen basieren (fast) ausschliesslich auf Neutronen-Diffraktionsexperimenten, seien es einfache Antiferromagnete (Verifizierung des Modells von Néel), Ferrimagnete, (inkommensurabel) modulierte Strukturen, Spiralstrukturen, "Fans", "Spin-Slips", "Cycloids", etc.
- Mittels Neutronendiffraktion und diffuser kritischer Neutronenstreuung (Beobachtung kritischer magnetischer Fluktuationen) konnte die Natur der magnetischen Phasenübergänge im Detail verstanden werden.
- Mittels polarisierter Neutronenreflektometrie konnte zweidimensionale magnetische Ordnung an Oberflächen und Grenzflächen von Multischichtmaterialien beobachtet werden. Eine wichtige Erkenntnis ist die Tatsache, dass sich magnetische Ordnung auch durch nicht-magnetische Schichten fortpflanzen kann.
- Pionierexperimente mittels Neutronendiffraktion ergaben Informationen über die magnetische Kernordnung in Kupfer und Silber mit antiferromagnetischer

Ordnung unterhalb 70 nK und 600 pK. Damit wurde der Grundzustand ( $T=0$ ) dieser elektronisch nicht-magnetischen Materialien eindeutig charakterisiert.

## 6.2 Gegenwärtige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen

Die Materialforschung mit der Zielsetzung der Synthese neuer magnetischer Materialien hat weltweit hohe Priorität in den Forschungsprogrammen. Auch in der Schweiz ist sie Teil der aktuellen Forschungsaktivitäten in den Bereichen Nanomaterialien, Supramolekulare Chemie und Festkörperphysik. In diesen Programmen sind die elastische und inelastische Neutronenstreuung essentielle Methoden zur Erforschung der magnetischen Strukturen neuartiger magnetischer Materialien und der energetischen Verhältnisse in der neuen Verbindungsklasse der "Single-Molecule Magnets".

Zur Zeit sind mit Schweizer Beteiligung drei europäische Forschungsprogramme aktiv, welche sich mit dem Magnetismus von Supramolekularen Verbindungen und Nanomaterialien auseinandersetzen. In den USA heisst es: "Nanotechnology: The Next Big Thing. US National Nanotechnology Initiative aims to create another Industrial Revolution" (May 1, 2000 C&EN). Die Europrogramme lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- European TMR Research Network Programme: "Molecular Magnetism: From Materials toward Devices". In diesem Forschungsprogramm sind 8 Forschungsgruppen (Bordeaux, Paris, Grenoble, Florence, London, Barcelona, Valencia, Bern) zu einem Netzwerk zusammengeschlossen. Das Ziel ist die Synthese und die Untersuchung der physikalischen Eigenschaften supramolekularer Verbindungen, die eine spontane Magnetisierung unterhalb einer kritischen Temperatur aufweisen. Die Methode der Neutronenstreuung wird in den Forschungsprojekten angewendet, um i) die magnetischen Strukturen zu bestimmen, ii) die Spin-Verteilung mittels polarisierter Neutronendiffraktion zu bestimmen und iii) mittels inelastischer Neutronenstreuung die energetischen Kopplungskonstanten zu evaluieren.
- European ESF Scientific Programme: "Molecular Magnets". In diesem Forschungsprogramm sind mehrere europäische Forschungsgruppen zu einem Netzwerk zusammengeschlossen. Die Zielsetzung stimmt mit der obigen überein. Die Schweizer Forschungsgruppen (Leitung Univ. Bern) organisierten 2001 die Mid-Term Konferenz zum Thema 'Molecular Magnets' mit einer Beteiligung von 150 Forschern aus 11 europäischen Ländern. Die erfolgreiche Konferenz zeigt die Dynamik des Forschungsgebietes auf.

- European TMR Research Network Programme: “High Spin Molecules”. Dieses neueste Programm fokussiert auf die aktuelle Thematik der “Single-Molecule Magnets”. Auch hier spielt die Methode der inelastischen Neutronenstreuung eine wesentliche Rolle.

Auf dem Gebiet der Festkörperphysik nutzen viele schweizerische Forschergruppen intensiv die Neutronenstreuung zur Aufklärung magnetischer Strukturen, wobei insbesondere hochkorrelierte Elektronensysteme im Zentrum der Aktivitäten stehen: Hochtemperatur-Supraleiter (Bestimmung der Phasendiagramme zum Verständnis des Zusammenhangs zwischen Supraleitung und Magnetismus), Kondo-Systeme (neuartige Phänomene im Zusammenspiel zwischen magnetischer und quadrupolarer Ordnung, z. B. quadrupolar induzierte Gitterverzerrungen bei Hexaboriden Seltener Erden R, sukzessive magnetische Ordnung verschiedener magnetischer R-Untergitter bei  $R_3Pd_{20}(Ge,Si)_6$ -Verbindungen), “giant magnetoresistance” Manganate und neuere Mn-Brownmillerite (z.B. Änderung der Natur der magnetischen Ordnung durch Dotierung oder der erstmals auf DMC/SINQ als Zusammenarbeit von JINR, Dubna und LNS nachgewiesene Einfluss der Sauerstoff-Isotopensubstitution), Seltenerd-Nickel-Borcarbide (Koexistenz von Supraleitung und magnetischer Ordnung), druckinduzierte magnetische Ordnungseffekte in Monopnictiden und Monochalcogeniden der Lanthaniden und Actiniden, metamagnetische Phasenübergänge in Seltenerd-Cobaltaten, etc. Von besonderem Interesse ist auch der vom LNS mittels Einkristallen an der SINQ und am ILL untersuchte komplexe Magnetismus des Quantensystemes  $CuB_2O_4$  mit Soliton-Bildung durch Dzyaloshinski-Moriya-Wechselwirkung.

### *6.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen*

Anhand der in Abschnitt 6.2 erwähnten Aktivitäten und Programme, welche in der Regel ein sehr kompetitives Evaluationsverfahren bestehen mussten, kann der Stellenwert der Thematik “Magnetismus und magnetische Strukturen” in der aktuellen Forschung klar belegt werden. Die meisten dieser Forschungsprogramme haben langfristige Zielsetzungen. Es ist deshalb für die involvierten Forscher selbstverständlich, dass ohne die Neutronenstreuung auf dem Gebiet der magnetischen Strukturen auch in Zukunft keine Forschung betrieben werden kann; sie werden deshalb die Methode der Neutronenstreuung weiterhin intensiv nutzen. Darüberhinaus lassen sich aus den für die Zukunft absehbaren instrumentellen Entwicklungen folgende Trends in in der Erforschung magnetischer Strukturen – im Sinne einer Diversifizierung der Aktivitäten – erkennen:

- Experimente mit polarisierten Neutronen, insbesondere die vor einigen Jahren eingeführte dreidimensionale Polarisationsanalyse, werden einen grossen Stellenwert erhalten, weil damit magnetische Streuphänomene eindeutig erfasst

werden können. Insbesondere erhofft man sich genauere Informationen über Spinrichtungen und magnetische Formfaktoren sowie eine eindeutige Separierung der Spinfluktuationen in longitudinale und transversale Komponenten.

- Die magnetischen Materialien werden immer komplexer, mit Einheitszellen von hundert und mehr Atomen. Die Aufklärung magnetischer Strukturen erfordert deshalb höchst auflösende Neutronendiffraktometer, die heute (aus Intensitätsgründen) noch nicht verfügbar sind. Höchstaufgelöste Neutronendiffraktion ist ebenfalls erforderlich zur Bestimmung kleiner struktureller Verzerrungen bei magnetischen Phasenübergängen.
- In vielen Materialien machen die magnetischen Ionen nur einen kleinen Volumenanteil aus, z.B. in eisenhaltigen Proteinen wie Ferredoxin oder Adrenodoxin. Die Bestimmung von Spindichteverteilungen in solch magnetisch "verdünnten" Systemen ist mit heutigen Neutronenquellen aus Intensitätsgründen nicht möglich.
- "Real time" Experimente, z.B. Kinetik langsamer magnetischer Phasenübergänge, Umklappung magnetischer Domänen, Spinkorrelationen in Ferroflüssigkeiten.
- Experimente an Systemen mit kleinen Volumina ( $\ll 1 \text{ mm}^3$  und deshalb für Untersuchungen an heutigen Neutronenquellen zu klein). Dazu gehören:
  - Oberflächen und Grenzflächen von magnetischen Multischichtsystemen;
  - Magnetische Domänen;
  - "Real Space Imaging" zur Untersuchung lokaler magnetischer Eigenschaften (z.B. "random fields" in Antiferromagneten, Korrelationen zwischen strukturellen und magnetischen Defekten);
  - Von Natur aus kleine Einkristalle (z.B. Hämoglobin)
  - Experimente unter extremen Bedingungen, z.B. hohe Magnetfelder und hohe Drucke, vor allem auch bei tiefen Temperaturen, welche nur für kleine Volumina applizierbar sind.

#### *6.4 Schlussbemerkungen*

Die zukünftigen Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen auf dem Gebiet der magnetischen Strukturaufklärung werden systematisch weitergeführt werden. Für "konventionelle" Problemstellungen wird die Spallationsneutronenquelle SINQ am PSI Villigen auch in Zukunft eine essentielle Rolle als "home base" spielen. Der Zugang zum ILL Grenoble sollte weiterhin gesichert sein, insbesondere für Experimente mit thermischen und heißen Neutronen. Letztlich werden viele der in Abschnitt 6.3 erwähnten Fragestellungen aus Intensitätsgründen nur an einer Neutronenquelle der dritten Generation (ESS) möglich sein.

## 7. Wissenschaftliche Aktivitäten: Biologie

### 7.1 Einleitung

In der biologischen Forschung lassen sich heute im wesentlichen 4 Arten von Experimenten mit Neutronen unterscheiden: **Neutronenkristallographie**, **Neutronenkleinwinkelstreuung**, **inelastische Neutronenstreuung** und **Neutronenreflexion**. Dabei stehen strukturbioologische Fragestellungen, Fragen der Dynamik von Makromolekülen sowie Fragen der Interaktion von Proteinen mit Mizellen und Membranen im allgemeinen im Vordergrund. Für bestimmte dieser Fragestellungen bieten Experimente mit Neutronen spezifische oder einzigartige Vorteile. Für die hochaufgelöste Neutronen Proteinkristallographie betrifft dies die genaue Lokalisation von Protonen (bzw. Deuteronen), welche für Enzymmechanismen und für Fragen der Solvatation von grosser Bedeutung sein können. Die Neutronenkleinwinkelstreuung bietet gegenüber der Röntgenkleinwinkelstreuung Vorteile bezüglich der Art und des Bereichs der Kontrastvariation, was insbesondere bei der Untersuchung von Protein-Nukleinsäure Komplexen ausgenutzt wird. Die quasi-elastische und inelastische Neutronenstreuung schliesslich erlauben die Analyse von makromolekularen Bewegungen und Schwingungen. Der Bereich interner makromolekularer Schwingungen ist auch im Zusammenhang mit molekulardynamischen Rechnungen von Interesse und ist mit anderen Methoden nur schwer zugänglich. Das noch recht neue Anwendungsgebiet Neutronenreflexion sollte es erlauben, mit relativ kleinen Materialmengen die Wechselwirkung zwischen Biomolekülen und Membranen bei submolekularer Auflösung zu untersuchen.

Trotz einer Vielzahl von interessanten Arbeiten und Resultaten in diesen Gebieten wird diese Forschung aber nach unseren Beobachtungen von der Mehrzahl der Biologen nicht allzu stark wahrgenommen, und sie muss wohl als ausgesprochenes Spezialgebiet betrachtet werden. Dies gilt aber für viele biophysikalische Methoden wenn auch in unterschiedlichem Masse. Es stellt sich natürlich die Frage, ob dies so bleiben wird oder ob verbesserte technische Möglichkeiten die Bedeutung oder den Stellenwert der biologisch-orientierten Forschung mit Neutronen erhöhen könnten.

### 7.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen

Die Analyse der in den vergangenen drei Jahren an europäischen Neutroneneinrichtungen durchgeführten Experimente mit biologischer Fragestellung hat ergeben, dass keine Schweizer Forschergruppe Experimente in diesem Bereich durchgeführt hat. Dies wurde auch durch weitere Abklärungen mit Schweizer Forschern bestätigt. Obschon es in der Vergangenheit vereinzelt solche Experimente gegeben hat, hat sich klar gezeigt, dass zur Zeit keine Gruppe in der Schweiz eine

längerfristig angelegte Aktivität im Bereich der biologischen Forschung mit Neutronen ausübt. Die mit der SINQ geschaffenen, neuen Möglichkeiten etwa im Bereich von SANS scheinen bisjetzt von der biologischen Forschung in der Schweiz wenig wahrgenommen worden zu sein.

### *7.3 Zukünftige Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen*

Das Fehlen von auf diesen Gebieten aktiven Gruppen in der Schweiz macht es schwierig, die zukünftigen Aktivitäten einigermaßen realistisch abzuschätzen. Als mögliche Interessenten können aber sicher die auf dem Gebiet der Proteinkristallographie tätigen Gruppen angesehen werden. Diese wurden befragt, ob sie in der näheren Zukunft Experimente mit Neutronen planen oder ob eine deutliche Erhöhung des Neutronenflusses (bzw. eine deutliche Verkleinerung der benötigten Einkristalle) ihr Interesse wecken würde. Von den 7 befragten Gruppen (2 Industriegruppen) hat einzig Prof. Richmond (ETH, Zürich) deutliches Interesse gezeigt und zwar in erster Linie für "contrast matching" in Kristallen von sehr grossen Protein-DNA Komplexen bei niedriger Auflösung. Hochaufgelöste Neutronenkristallographie würde von einigen Gruppen bei Vorliegen entsprechender Fragestellungen, primär im Zusammenhang mit Enzymmechanismen, in Betracht gezogen, zur Zeit sind aber von keiner Gruppe solche Untersuchungen im Gange oder geplant.

### *7.4 Schlussfolgerungen und Empfehlungen*

Die Forschung mit Neutronen hat sicher unausgeschöpftes Potential in den vier anfangs genannten Gebieten. Die Möglichkeit der gleichzeitigen Messung von räumlichen und zeitlichen Korrelationsfunktionen in für das Studium von strukturellen und dynamischen Eigenschaften von Makromolekülen geeigneten Bereichen ist einzigartig und erscheint allgemein noch zu wenig genutzt. Die spezifischen experimentellen Methoden und ihre Bedeutung für Fragestellungen der Strukturbiologie, der makromolekularen Dynamik und insbesondere der Struktur und Dynamik von biologischen Modellmembranen sind in anderen Dokumenten [1,2] eingehend dargestellt worden. Das Fehlen spezifischer Aktivitäten in der Schweiz macht es im Moment schwierig, hier bestimmte Akzente zu setzen oder spezifische Bedürfnisse zu formulieren. Es ist vorauszusehen, dass in der Zukunft z.B. im Zusammenhang mit Enzymmechanismen vermehrt detaillierte Fragen gestellt werden, auf die Neutronenexperimente Antworten geben könnten. Ebenfalls dürfte das Interesse an der Untersuchung der strukturellen und dynamischen Eigenschaften von Membranproteinen in verschiedener Umgebung (Detergenzmizellen bzw. Lipidmembran) zunehmen, da immer mehr solcher Proteine für biophysikalische Studien zugänglich werden sollten. Im Zusammenhang mit NMR Untersuchungen von Proteinen werden auch zunehmend deuterierte Proteine, welche auch für

Neutronenexperimente interessant sein könnten, hergestellt. Für die meisten Neutronenexperimente scheint aber im Vergleich zu den heutigen Möglichkeiten eine signifikante Erhöhung des Flusses um mindestens eine Grössenordnung notwendig, um die Voraussetzung für eine breitere Anwendung dieser Art von Forschung zu schaffen. Sicher können auch weitere Verbesserungen der Instrumentierung und von Detektoren einen wichtigen Teil zu einer erhöhten Attraktivität der Neutronenforschung beitragen.

Der Bedarf wird aber auch stark davon abhängig sein, ob in der Schweiz Forschungsgruppen entstehen, die sich auf die biologische Forschung mit Neutronen spezialisieren und damit eine gewisse katalytische Funktion in ihrem Umfeld ausüben könnten. Es stellt sich auch die Frage, ob ganz allgemein zuwenig Kontakt zwischen den methodisch auf Neutronen spezialisierten Gruppen und der biologischen Forschung in der Schweiz besteht. Eine offensive Information über die heutigen und zukünftigen Möglichkeiten der Forschung mit Neutronen wäre sicher notwendig, um das gegenwärtig eher schwache Interesse zu wecken.

- [1] Scientific Prospects for Neutron Scattering with Present and Future Sources  
An ESF Exploratory Workshop in collaboration with the European Neutron Scattering Association (ENSA), Autrans, France, January 1996
- [2] Forschung mit Neutronen in Deutschland – eine Strategie für die nächsten 15 Jahre, 4. Komitee für die Forschung mit Neutronen, Jülich (1996-1999)

## 8. Wissenschaftliche Aktivitäten: Weiche Materie

### 8.1 Einleitung

Der Begriff der weichen kondensierten Materie fasst die Wissenschaft der Kolloide, Polymere, Biopolymere, Tenside und ihrer sich bildenden supramolekularen Aggregate zusammen. Dieser Wissenschaftsbereich ist sowohl ein attraktives Gebiet der modernen Grundlagenforschung als auch von enormer technologischer Relevanz für eine Vielzahl von Anwendungen. International ist diese Forschungsrichtung geprägt durch ein rasches Wachstum, und es werden grosse Anstrengungen unternommen, um unser detailliertes Verständnis der grundlegenden Eigenschaften von Systemen der weichen kondensierten Materie zu verbessern und Querverbindungen zu vielen industriellen Anwendungen zu schaffen.

Die weiche kondensierte Materie ist jedoch nicht nur ein attraktives Gebiet der modernen Grundlagenforschung, sondern von ausserordentlicher technologischer Bedeutung in Bereichen wie zum Beispiel der Herstellung synthetischer Dispersionen für Beschichtungen, Keramikherstellung, Polymerverarbeitung, Korrosionsphänomenen, Umweltverschmutzung, Lebensmitteltechnologie, pharmazeutischen Industrie, biokompatiblen Materialien und Biotechnologie. Kolloidale Wechselwirkungen sind omnipräsent und beeinflussen eine Vielzahl von technologischen Prozessen, doch sie sind oft unsichtbar, werden ignoriert und sind deshalb auch nur mangelhaft kontrolliert. Die Domäne der weichen kondensierten Materie bildet somit einen kritischen Übergangsbereich zwischen makro- und mikroskopischen Prozessen und Strukturen.

In den letzten 20 Jahren hat die Neutronenstreuung eine Schlüsselrolle in der Erforschung der strukturellen und dynamischen Eigenschaften dieser faszinierenden Materialien eingenommen. Dazu haben die folgenden Gründe beigetragen:

- Die erreichbaren Zeit- und Längenskalen: insbesondere die Kleinwinkel-Neutronenstreuung (SANS) und die Spin-Echo Methode (NSE) erlauben es in idealer und einzigartiger Weise, sowohl lokale als auch globale strukturelle und dynamische Eigenschaften von Polymeren, Kolloiden und Mizellen zu studieren. Beispiele dafür sind die Konformation grosser Makromoleküle (Polymere), ihre Diffusion und die Entropie-getriebene Dynamik auf globaler Skala wie auch die inter- und intrastrukturellen Korrelationen und die entsprechende Kettendynamik (rotatorische Bewegung von Methylgruppen etc.) auf lokaler Skala.
- Kontrastvariation: durch entsprechende Kontrastvariation können auch in Mehrkomponentensystemen gezielt einzelne Moleküle oder Teile von ihnen hervorgehoben und so auch komplexe Strukturen entschlüsselt und strukturelle

und dynamische Eigenschaften studiert werden. Dabei hat sich der grosse Kontrast zwischen Wasserstoff und Deuterium als wichtigstes Instrument in der Erforschung weicher Materie mit Hilfe von Neutronen erwiesen. Die Möglichkeit, den Kontrast auch bei leichten Atomen zu manipulieren, ist eine spezifische Eigenschaft der Neutronenstreuung, deren Bedeutung in Zukunft sicher noch weiter ansteigen wird. Dies nicht zuletzt auch deshalb, weil vermehrt in vielen Anwendungen Materialien durch Kombination vieler Komponenten für spezielle Anwendungen optimiert werden (Kompositmaterialien). Die Aufschlüsselung der Struktur und eine Erforschung der Struktur-Funktion-Relation ist dann ohne gezielte Kontrastvariation nicht mehr zu erreichen, und die Neutronenstreuung wird hier eine einzigartige Rolle übernehmen können.

- Durchdringungsfähigkeit: die hohe Durchdringungsfähigkeit ist ideal für die Untersuchung des Einflusses von externen Parametern und Feldern wie z.B. Temperatur, Druck, Scherung oder komplexe Strömungen. Damit können Proben und ihre zeitliche Entwicklung unter realistischen, produktionsnahen Bedingungen studiert werden.
- Neutronen-Reflektivitätsmessungen in Verbindung mit Kontrastvariation stellen eine einzigartige Möglichkeit für die Untersuchung von Oberflächen und Grenzflächen weicher Materie dar.

Die Erforschung der weichen kondensierten Materie hat eine langjährige Tradition und einen grossen Stellenwert in Ländern wie Deutschland, England, Frankreich, Holland oder in Skandinavien. Traditionell stellen Forscher aus diesem Bereich eine der grössten Benutzergruppen an Neutronenstreucentren wie dem ILL oder Rutherford Laboratories, und Instrumente wie SANS- oder NS-Spektrometer werden sehr stark genutzt. Trotz dieser internationalen Entwicklung und der Tatsache, dass die Schweiz traditionell ein starkes industrielles Interesse an der Domäne der weichen kondensierten Materie hat (z.B. in der Pharma- und Lebensmittelindustrie), finden wir in unserem Land eine geringe Zahl von universitären Forschergruppen in der Grundlagenforschung. Dies spiegelt sich auch in der Benutzerstatistik von Neutronencentren wie das ILL oder die SINQ wider, wo bis vor wenigen Jahren nur eine schweizerische Gruppe grössere Neutronenaktivitäten aufwies.

In jüngster Zeit zeichnet sich eine klare Trendwende ab. So konnte man eine zunehmende Aktivität der in der Schweiz auf dem Gebiet der weichen kondensierten Materie arbeitenden Forscher beobachten. An verschiedenen Universitäten sind neue Lehrstühle auf diesem Gebiet entstanden (Lausanne, Zürich, Fribourg, Genf). Dies zeigt sich auch bereits in der Statistik der SINQ, wo neue schweizerische Nutzergruppen hinzugekommen sind. Dies ist natürlich besonders wichtig im Hinblick auf die Tatsache, dass die Wissenschaftler in der Schweiz dank der neuen Spallationsquelle (SINQ) und der im Bau befindlichen Synchrotron-Lichtquelle (SLS)

am Paul Scherrer Institut sich bald in einer einmaligen Situation befinden. Es stehen ihnen dann hervorragende Grossforschungsanlagen zur Verfügung, die sich ideal für die moderne Forschung auf dem Gebiet der weichen kondensierten Materie eignen.

## *8.2 Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen in den letzten fünf Jahren.*

### *8.2.1 Amphiphile Mehrkomponentensysteme: Struktur, Dynamik, Wechselwirkungen und Strukturelle Umwandlungen*

Amphiphile Moleküle (“Surfactants”, Tenside) in Lösung zeigen auf Grund einer delikaten Balance von Kräften ein äusserst komplexes Aggregationsverhalten. Besonders interessante Systeme sind hier die sogenannten Mikroemulsionen, wo Öl und Wasser in der Gegenwart eines Tensides thermodynamisch stabile und makroskopisch homogene Phasen bilden können. Diese Mikroemulsionen zeigen Strukturen auf einer Längenskala von Nanometern, wo Wasser und Öl Domänen bilden, die durch einen Tensidfilm getrennt und stabilisiert werden. In den letzten Jahren haben wir ein detailliertes Verständnis der Faktoren, die die Stabilität und mikroskopische Struktur dieser nanostrukturierten Systeme beeinflussen, erreicht. Im Gegensatz dazu wissen wir praktisch nichts über die Nichtgleichgewichts- oder metastabilen Zustände und die Kinetik einer Relaxation zu einem neuen Gleichgewichtszustand, die bei einer Änderung der physikalischen Parameter auftreten.

In einer neueren Studie wurde nun ein solcher Prozess, nämlich die Phasentrennung einer reinen Ölphase aus einer Öl-in-Wasser Mikroemulsion nach einem schnellen Temperatursprung mit Hilfe von zeitaufgelösten SANS-Experimenten untersucht. Dabei wurde der hohe Neutronenfluss und der grosse 2D-Detektor des SANS Instrumentes D22 am ILL ausgenützt, ohne das diese Experimente nicht möglich gewesen wären. Kombiniert mit entsprechender Kontrastvariation liefern dabei die zeitaufgelösten SANS Messungen eine genaue und detaillierte Beschreibung der Bildung (Nukleation) und des anschliessenden Wachstums von Öltröpfchen. Zum ersten Mal wurden so eine quantitative Charakterisierung der simultanen zeitlichen Entwicklung der Grössenverteilung der kleinen Mikroemulsionströpfchen und der Öltröpfchen, die in dieser Phasentrennung entstehen, erreicht. Damit konnte gezeigt werden, dass diese Wachstumsprozesse via sogenannte Ostwald-Reifung ablaufen, und es stehen erstmals Daten zur Verfügung, die eine gründliche und kritische Überprüfung der entsprechenden Theorien erlauben. Diese Experimente wurden denn auch vom ILL als sogenanntes “Scientific Highlight” im Jahresbericht 1998 vorgestellt, wodurch das enorme Potential von zeitaufgelösten SANS Experimenten in der Erforschung weicher Materie illustriert wird.

Ein anderes wissenschaftliches “Highlight” aus dem ILL Jahresbericht 1997 zeigt eine weitere Studie, in der mit Hilfe von zeitaufgelösten SANS Experimenten strukturelle Umwandlungen in biologisch relevanten amphiphilen Mehrkomponentensystemen untersucht wurden. Dabei handelt es sich um die sogenannte Mizell-Vesikelumwandlung, die sowohl hinsichtlich ihrer biologisch-medizinischen Relevanz (Membran-Rekonstitution, Stofftransporte im Körper), ihrer Anwendung in der Pharmazie (Medikamentträgersysteme) als auch wegen ihres Modellcharakters in der experimentellen und theoretischen Physik der weichen Materie auf enormes Interesse gestossen ist. Auch hier konnten erstmals dank der Neutronenstreuung quantitative Informationen über den Ablauf dieser strukturellen Umwandlung und die Existenz von intermediären Nichtgleichgewichtszuständen gewonnen werden, die nun eine Fülle von neuen theoretischen Überlegungen nach sich gezogen haben. In der Zwischenzeit wird nun versucht, die untere Grenze der Zeitskala, auf der zeitaufgelöste SANS Messungen gemacht werden können, mit Hilfe von “stopped flow Experimenten” von ca. 1s in den Bereich von 10ms auszudehnen, und so auch schnellere Umwandlungsprozesse zu beobachten. Erste Testexperimente haben bereits am ILL (D22) stattgefunden.

Neben den strukturellen Umwandlungen sind aber auch die strukturellen und dynamischen Gleichgewichtseigenschaften von Mizellen und Mikroemulsionen weiterhin detailliert untersucht worden, wobei speziell SANS in Verbindung mit Kontrastvariations-experimenten eine Fülle von wertvollen Daten geliefert haben. Diese Experimente wurden sowohl am ILL als auch an der SINQ durchgeführt. Mikroemulsionen sind auch für eine Vielzahl von industriellen und technologischen Anwendungen wichtig, und in den letzten Jahren hat auch die Industrie zunehmend ein Interesse an SANS Experimenten gezeigt. So wurde Ende 1999 eine Studie über die strukturellen Eigenschaften neuartiger Mikroemulsionssysteme durch eine industrielle schweizerische Nutzergruppe an der SINQ durchgeführt, und weitere Experimente sind geplant.

### *8.2.2 Kolloidale Systeme: Struktur, Wechselwirkungen, Aggregation und Gelbildung*

Es wurden eine Reihe von Untersuchungen mit kolloidalen Systemen durchgeführt, wobei die Experimente nahezu ausschliesslich an der SINQ (SANS) gemacht wurden. Dabei standen folgende Themenkreise im Vordergrund:

*Struktur, Stabilität, Wechselwirkungen und Clusterbildung in konzentrierten inorganischen Kolloidsuspensionen:* hier wurde speziell auch der Einfluss von organischen stabilisierenden Schalen mit Hilfe von SANS untersucht, wobei Kontrastvariation zur Unterdrückung der Mehrfachstreuung und der selektiven Auswahl des nanokristallinen Kerns und der organischen Schale verwendet wurde.

*Struktur, Wechselwirkungen und Dynamik in stark wechselwirkenden kolloidalen Suspensionen:* es wurden systematische Studien der Wechselwirkungseffekte auf die Struktur und Dynamik von konzentrierten und stark wechselwirkenden ladungsstabilisierten organischen Kolloiden (Latex-Partikel) durchgeführt. Dabei wurden SANS Experimente mit optischen Methoden (“diffusing wave spectroscopy, DWS”) kombiniert, die komplementäre Informationen über die lokale Dynamik (Selbstdiffusion der Partikel) auf vergleichbaren Längenskalen liefern. In einem nächsten Schritt konnten erstmals simultan zeitaufgelöste SANS und DWS Messungen an destabilisierten Suspensionen durchgeführt werden und dabei on-line Aggregation und Sol-Gelübergang studiert werden. Dies wurde möglich, nachdem an der SANS Anlage an der SINQ eine entsprechende und in dieser Form einzigartige neue Probenumgebung aufgebaut worden war.

*Kolloidale Gele:* hier wurde der Einfluss der Mehrfachstreuung auf die Bestimmung der fraktalen Dimension von kolloidalen Gelen untersucht, wobei Lichtstreuung und SANS kombiniert wurden und so wertvolle komplementäre Informationen erhalten werden konnte.

Daneben wurden eine Reihe anderer kolloidaler Systeme untersucht und z.B. in einer sogenannten “feasibility study” die Verwendung von SANS für die Charakterisierung natürlicher im Grundwasser vorkommender Kolloide abgeklärt.

### *8.2.3 Polymere und Biopolymere*

Hier wurden einerseits systematische Untersuchungen an sogenannten “Gleichgewichts-Polymeren und -Polyelektrolyten” mit Hilfe von SANS durchgeführt, andererseits die fraktale Struktur von Agareose-Gelen als Funktion der Ionenstärke des Lösungsmittels und der Abkühlrate charakterisiert.

Die Experimente mit Gleichgewichtspolymeren wurden sowohl am ILL als auch an der SINQ durchgeführt. Am ILL (D22) wurden dabei sehr verdünnte Proben gemessen, die ohne den hohen Neutronenfluss und den grossen  $q$ -Bereich nicht messbar gewesen wären, während an der SINQ (SANS) Strukturfaktoren von konzentrierten Proben gemessen wurden. Diese Experimente sind Teil einer langfristigen Studie, in denen mizellare Systeme als Modellsysteme für Polymere und Polyelektrolyten verwendet werden, um fundamentale Aspekte der Polymerphysik zu untersuchen.

Bei den Agarose-Gelen handelt es sich um ausserordentlich interessante, aber auch komplexe Biopolymergele, die für viele Anwendungen sehr wichtig sind. Hier hat sich eine neue Usergruppe gebildet, die aus den Umweltnaturwissenschaften kommt und nun auch längerfristig SANS Experimente an Biopolymer- und Kolloidgelen durchführen wird.

### 8.3 Zukünftige Entwicklung, Analyse und Empfehlungen

Heute wird ein grosser Teil der Experimente im Bereich der weichen Materie an der SINQ durchgeführt, und die SINQ wird auch in Zukunft eine wichtige Rolle als "home base" spielen. Gleichzeitig gehen jedoch auch die Trends in der Forschung mit weicher Materie in neue Stossrichtungen mit den entsprechenden Konsequenzen für die mittel- und längerfristige Zukunft der Neutronenstreuung in der Schweiz. Besonders wichtig wird die Erforschung von Nichtgleichgewichtsvorgängen mit Hilfe von zeitaufgelösten Streuexperimenten, wie sie durch die neuesten instrumentellen Entwicklungen mit Neutronen- und Röntgenstreuung erst ermöglicht worden sind. Dazu gehören z.B. Experimente mit angelegten externen Feldern (Scherung, elektrische Felder, Hochdruck), aber auch durch äussere Parameter getriggerte Phasenübergänge oder Sol-Gel Übergänge. Ein anderer sehr interessanter Bereich ist die Erforschung der Dynamik komplexer Flüssigkeiten. Hier wird sicher die NSE Technik noch an Bedeutung gewinnen, sofern der zugängliche Zeitbereich um ein bis zwei Grössenordnungen gesteigert werden kann. Diese Trends können wie folgt zusammengefasst werden:

- Massgeschneiderte komplexe Kompositmaterialien (weiche, weich/harte Materialien) für industrielle Anwendungen. Diese Komplexität in der Zusammensetzung und Funktionalität verlangt auch entsprechend breite Bereiche der strukturellen und dynamischen Auflösung.
- Vermehrt werden nicht nur Gleichgewichtseigenschaften, sondern strukturelle Änderungen, die durch externe Felder wie Scherung induziert werden, untersucht. Dies bedingt einerseits entsprechende Probenumgebungen, die z.T. sehr prozessnah sein müssen, andererseits auch zeitaufgelöste Experimente.
- Die zukünftigen Trends verlangen auch Experimente an sehr stark verdünnten Proben, Charakterisierung sehr grosser Strukturen und (zeit-aufgelöste) in-situ Messungen, die alle einen sehr hohen Neutronenfluss und um Grössenordnungen ausgedehnte  $q$ -Bereiche im Vergleich zu den heute vorhandenen Instrumenten voraussetzen.

Um diese Experimente durchführen zu können, ist an einem kürzlich durchgeführten Workshop des ESS Scientific Advisory Committees (SAC) und der ENSA (European Neutron Scattering Association) für den Bereich der weichen Materie eine entsprechende Prioritätenliste für eine neue Generation von Neutronenstreuinstrumenten an der ESS zusammengestellt worden. Dabei gelten für die Schweizer Benutzer in diesem Bereich die gleichen Bedürfnisse, und die folgenden Instrumente werden auch für uns absolute Priorität haben:

1. SANS Instrument mit sehr hoher Intensität
2. Fokussierendes SANS Instrument für sehr kleine Streuvektoren
3. Reflektometer mit hoher Intensität
4. Neutronen Spin Echo Instrument mit hoher Auflösung

Auf Grund der für diese neuen Zielrichtungen notwendigen instrumentellen Anforderungen ist klar, dass es auch in Zukunft europäische Neutronenstreuzentren brauchen wird, um diese Bedürfnisse zu decken. So wird einerseits das ILL auch in absehbarer Zukunft wegen des hohen Neutronenflusses eine wichtige Rolle spielen, und eine Reihe von neuen Experimenten wird nur dort durchgeführt werden können. Gleichzeitig ist auch absehbar, dass die zukünftige Entwicklung in der weichen Materie einen weiteren signifikanten Zuwachs in der verfügbaren Neutronenintensität benötigt, der nur durch eine neue Generation eines Neutronenstreuentrums (ESS) geliefert werden kann. Deshalb wird aus diesem Bereich denn auch klar eine Unterstützung des ESS Projekts bejaht und hat entsprechend hohen Stellenwert.

#### *8.4 Fazit*

Insgesamt können die für den Bereich der weichen Materie gemachten Aussagen über die zukünftige Nutzung von Neutronenquellen wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Bedeutung der SINQ als “home base“ für schweizerische Forschergruppen ist unbestritten.
- Es besteht nach wie vor ein grosser Bedarf an Strahlzeit am ILL, der wegen der speziellen Bedürfnisse dieser Usergemeinde vermutlich auch nach der Inbetriebnahme der ESS noch in begrenztem Masse andauern wird.
- Für die ESS kann eine starke Nutzung durch schweizerische Forschergruppen vorausgesagt werden. Wir befürworten eine Schweizer Beteiligung am Projekt ESS.

## 9. Wissenschaftliche Aktivitäten: Materialwissenschaften

### 9.1 Einleitung

Unter Ausschluss der in einem eigenen Kapitel behandelten Stoffe (Weiche Materie, Gläser und Flüssigkeiten), zu denen auch die polymeren Werkstoffe zählen, beschränken sich die hier zu präsentierenden Inhalte auf anorganische Materialien, insbesondere metallische und keramische Werkstoffe. Dabei sind rein strukturelle Fragen wie auch solche der Dynamik in anderen Kapiteln zu finden.

Eine der grundlegenden Aufgaben der Materialforschung ist die Aufklärung des Gefüges und seiner Veränderungen. Dazu gehören u.a. die Verteilung von Elementen, Phasen und inneren Spannungen über Abstände von einigen Atomradien bis in makroskopische Dimensionen, die Orientierungsverteilung von Kristalliten, magnetischen Domänen und anderen Anisotropien ("Textur"), die Eigenschaften und Anordnungen von Punktdefekten, Versetzungen, Korngrenzen, Phasengrenzflächen, Domänengrenzen, die Ausbildung von Rissen, Poren usw. unter diversen Beanspruchungsarten, Eigenschaften und Veränderungen von Oberflächen und Schutzschichten. Neben den stärker verbreiteten traditionellen Untersuchungsmethoden auf diesem Gebiet (Röntgenbeugung, Elektronenmikroskopie) und dem wachsenden Einsatz von Rastersonden hat die Neutronenstreuung bei der Erforschung zahlreicher materialwissenschaftlicher Fragen sehr spezifische Informationen geliefert. Dabei wurden die im Kapitel 1 aufgeführten speziellen Vorteile der Neutronenstreuung intensiv genutzt, insbesondere die grosse Eindringtiefe der Neutronen, Besonderheiten des Streukontrastes (Formfaktor, magnetische Streuung, Isotopenempfindlichkeit etc.). Da die Gefügebeeinflussung vor allem über Variationen geeigneter thermischer und mechanischer Prozessparameter erfolgt, ist der Einsatz von Neutronen bei "in-situ"-Untersuchungen (wegen der guten Transparenz von Fenstern, Hüllmaterialien usw.) besonders vorteilhaft, ebenso als Methode der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung.

### 9.2 Wichtige Forschungsaktivitäten schweizerischer Gruppen in den letzten fünf Jahren

#### 9.2.1 Reflektometrie an Dünnschichtsystemen

Hier stehen bisher anwendungsorientierte Fragen (Superspiegel, Neutronenoptik) an Materialien wie Co-Fe-V/Ti-N, Fe/Si, Co-Fe/Si im Vordergrund, insbesondere der Zusammenhang zwischen magnetischer Anisotropie und Spannungsanisotropie (PSI, SINQ).

### *9.2.2 Innere Spannungen*

Innere Spannungen erster Art sind über lokale Änderungen der Gitterkonstanten, also Messung von Bragg-Peaks mit möglichst hoher räumlicher Auflösung, erfassbar. Obwohl die räumliche Auflösung derzeit auf ca.  $(1 \text{ mm})^3$  begrenzt ist, lassen sich mit Neutronen wegen ihrer hohen Eindringtiefe lokale Dehnungen auch im Innern grosser Werkstücke messen. Erste Resultate wurden bisher an einer Reihe von thermisch gespritzten Schutzschichten gewonnen, um das Ausmass der Eigenspannungen in Abhängigkeit von den Herstellungsbedingungen zu analysieren (EMPA Thun, ILL).

An verschiedenen Eisenbahnradern wurde die Verteilung der Dehnung in radialer Richtung über den Querschnitt gemessen. An geschädigten Rädern und Radreifen wurden Korrelationen zwischen Dehnungsverteilung und Ausmass der Schädigung (inkl. Bruch) gefunden (PSI, Messungen bisher am ILL).

### *9.2.3 Phasenanalyse*

Im Rahmen von Früherkennungsbemühungen bei der Ermüdung metallischer Materialien wurde die Bildung von Martensit (Volumenanteile 0.3 bis 3%) in austenitischen Stählen deutlich vor der makroskopischen Rissbildung nachgewiesen. Auch Texturuntersuchungen wurden in diesem Zusammenhang begonnen (PSI, SINQ).

### *9.2.4 Ausscheidungen und Poren*

Hierzu liegen Ergebnisse einer Reihe von Untersuchungen vor allem mit Neutronenkleinwinkelstreuung vor, z.B. an nanostrukturierten Ferromagneten, für die die magnetischen Korrelationen aufgeklärt wurden, an Cu-, Ni- und anderen Legierungen, in denen sich die Bildung von Ausscheidungen im Nanometerbereich mit SANS (bei höheren Temperaturen auch in situ) verfolgen lässt. Die Frühstadien der Phasenseparation in massiven metallischen Gläsern (Zr-Ti-Cu-Ni-Al) wurde ebenfalls mit SANS untersucht, wie auch Poren in nanokristallinen Materialien und thermisch gespritzten Schutzschichten (ETH Zürich, PSI, EMPA Thun, Messungen an der SINQ und am ILL).

### *9.2.5 Neutronenradiographie*

Auf diesem Gebiet wurden dank der Entwicklung digitaler Verfahren in den letzten Jahren erhebliche Fortschritte erzielt (PSI-intern, SINQ). Wichtige Beiträge betreffen den Feuchtetransport in porösen Baustoffen, die Wasserstoffkorrosion und -akkumulation in Hüllrohren von Reaktorbrennelementen, die Verfolgung von Prozessen in elektrischen Brennstoffzellen und Batterien, Trocknungs- und Befeuchtungsvorgänge in Verbundwerkstoffen, ortsaufgelöste Analyse der

Borverteilung in metallischen Strukturkomponenten, Materialveränderungen unter Protonenbestrahlung (SINQ-Target!).

### *9.2.6 Ordnung in Legierungen*

Die diffuse elastische Neutronenstreuung einer Reihe von Legierungen wurde in neuerer Zeit auch bei höheren Temperaturen im thermodynamischen Gleichgewicht gemessen. Die Datenanalyse liefert effektive Wechselwirkungsparameter, die für die Analyse stabiler Grundzustände (geordnete Strukturen) und für Simulationen von Phasengleichgewichten verwendet werden (ETH Zürich, ILL und SINQ).

### *9.2.7 Wasserstoff in Metallen*

Aspekte der Strukturaufklärung und der Diffusion in Metallhydriden werden an anderer Stelle behandelt (s. "Kristallographie" und "Strukturelle und magnetische Anregungen"). Materialwissenschaftliche Bedeutung haben insbesondere Fragen der Ladung und Entladung von Wasserstoffspeichern und strukturelle Veränderungen bei Erstbeladung und zyklischen Be- und Entladungen (Univ. Genève, ILL, SINQ).

## *9.3 Künftige Entwicklung (Pläne schweizerischer Gruppen)*

Hier sollen die Antworten, die von schweizerischen Gruppen Anfang 2001 schriftlich vorgelegt wurden, kurz zusammengefasst werden. Darüber hinaus sind zahlreiche weitere Forscher grundsätzlich an den speziellen Möglichkeiten der Neutronenstreuung im Bereich Materialforschung interessiert, brauchen jedoch starke methodische Unterstützung, da es sich um eine Ergänzung zu bereits etablierten eigenen Spezialmethoden handeln würde.

### *9.3.1 Reflektometrie*

Erwartet werden starke Impulse bezüglich Fragestellungen zu biophysikalischen Grenzflächenprozessen, besonders auch zeitaufgelöst. Ummagnetisierungsprozesse in dünnen Schichten sollen ebenfalls in Echtzeit untersucht werden (PSI).

### *9.3.2 Innere Spannungen*

Für thermische Spritzschichten wird ein verstärkter Einsatz der Neutronenstreuung bei der Analyse der Eigenspannungen in Abhängigkeit von Prozessparametern und in Bezug auf die Beeinflussung physikalischer Eigenschaften erwartet (EMPA Thun). Untersuchungen an Eisenbahnradern, an Schweißnähten von Reaktorkomponenten (unter Einfluss von Bestrahlung mit schnellen Neutronen) und an verschiedenen

Industrie-Bauteilen unter hoher mechanischer Belastung sollen ebenfalls ausgeweitet werden (PSI).

### *9.3.3 Phasenanalyse*

Die begonnenen Arbeiten über Martensitbildung während der Ermüdung sollen systematisch fortgesetzt und ausgeweitet werden unter Einbeziehung der Texturteilung (PSI).

### *9.3.4 Ausscheidungen und Poren*

Zeitaufgelöste Untersuchungen von Phasenumwandlungen mit Bildung nanoskaliger Ausscheidungen werden zunehmend in situ bei mittleren und hohen Temperaturen angestrebt, wozu vor allem die Neutronenkleinwinkelstreuung eingesetzt wird (ETH Zürich). Auch stroboskopische Beobachtungen zyklischer Vorgänge mit Kleinwinkelstreuung sind vermehrt geplant (PSI).

### *9.3.5 Neutronenradiographie*

Die Entwicklungsmöglichkeiten dieser Methoden als Diagnosewerkzeug für industrielle Fragestellungen werden sehr positiv eingeschätzt, so dass eine Ausweitung der unter 9.2.5 beschriebenen Aktivitäten vorstellbar ist (SWISSMEM, PSI).

### *9.3.6 Ordnung in Legierungen*

Die Möglichkeiten der diffusen Neutronenstreuung mit und ohne Energieauflösung wurden, was "in-situ"-Experimente anbetrifft, erst wenig genutzt. Besonders eine Ausweitung zu höheren Temperaturen und zu mehrkomponentigen Systemen wird nützlich sein für die Erforschung von Hochtemperaturmaterialien, ihren Phasengleichgewichten und daraus resultierenden mechanischen Eigenschaften.

## *9.4 Anforderungen*

Es lässt sich allgemein feststellen, dass alle unter 9.3 genannten Forschungsvorhaben wie auch neue Entwicklungen durch höhere Neutronenflüsse am Probenort entscheidende Vorteile erfahren, z.B. zur

- Erhöhung der Empfindlichkeit zum Nachweis von Minoritätsphasen bei der Phasenanalyse und bei anderen Gefügekomponenten
- Steigerung der zeitlichen Auflösung bei kinetischen Prozessen

- Steigerung der instrumentellen Auflösung
- Reduzierung des Auflösungsvolumens bei der Analyse räumlicher Verteilungen von Phasen, Defekten und inneren Spannungen (erwünscht ca.  $(50 \mu\text{m})^3$ )
- Ermöglichung der Untersuchung dünnerer Schichten und kleinerer Objekte
- Reduktion der Messzeit

Neben der Qualität der Quellen und Basis-Instrumente sind jedoch auch die Zusatzgeräte von grosser Bedeutung, auf dem Gebiet der Materialforschung insbesondere Kryostaten, Magnete, Öfen zur thermischen Behandlung (kombiniert mit Hochdruckzellen und mechanischen Prüfsystemen), Supportsysteme auch für grosse Lasten, sichere Systeme zur Handhabung gefährlicher Proben usw.

Die SINQ steht für die Gruppen aus der Schweiz im Vordergrund für dort "machbare" Experimente, soweit die Infrastruktur "stimmt". Für viele Experimente wird das "Fenster" (z.B. in der Zeit-Temperatur-Ebene bei kinetischen Messungen) der durchführbaren Experimente am ILL erheblich erweitert, noch mehr durch die Möglichkeiten der ESS. Neben dieser rein "expansiven" Sicht ist die Aussicht auf "neue" Wissenschaft nicht zu vernachlässigen, z.B. bei Frühstadien von Phasenumwandlungen, Früherkennung von Materialschädigung, Verteilungen von Spannungen oder chemischen Gradienten im Nanometerbereich. In den Materialwissenschaften geht es oft um die optimale Kombination verschiedener Methoden. Welche Methoden zum Einsatz kommen, hängt vom Grad ihrer Entwicklung und von der Kompetenz ihrer Protagonisten ab. Die Neutronenstreuung ist hier im Verhältnis zu anderen Methoden noch sehr stark ausbaufähig.

## 10. Analyse und Empfehlungen

In einer quantitativen Analyse haben wir den “aktuellen Stand” sowie die Situation der letzten 3-4 Jahre bzgl. der Schweizer Nutzung der SINQ sowie der wichtigsten externen Neutronenzentren untersucht. Dabei haben wir eine fachgruppenübergreifende Beschreibung angestrebt, so dass eine knappe und klare Analyse der momentanen Situation ermöglicht wird. In den entsprechenden Kapiteln 4-9 wurden die aktuellen wissenschaftlichen Themen beschrieben sowie der Ausblick auf die nächsten 10-15 Jahre gegeben. Die “Convenors” der einzelnen Fachgruppen hatten die Aufgabe, die bisherigen und zukünftigen Neutronenbenutzer und ausgewiesene Experten auf den jeweiligen Gebieten nach ihrer Einschätzung zu fragen und diese zusammenzutragen. Ebenfalls wurden aus den einzelnen Gruppen aktuelle “Highlights” der Forschung knapp und präzise präsentiert. Im Rahmen dieser Untersuchung hat es sich gezeigt, dass die Schweiz eine relativ grosse und sehr aktive Nutzergemeinschaft besitzt. Allerdings sind deren Aktivitäten auf relativ wenige Forschungsbereiche beschränkt, in denen die Neutronenstreuung in der Schweiz traditionell eine wichtige Rolle gespielt hat: Festkörperphysik (insbesondere die Untersuchung der strukturellen und magnetischen Anregungen), Materialwissenschaften und Kristallographie. Andere Bereiche wie die Biologie oder weiche Materie, die international einen wichtigen Teil der Nutzergemeinde ausmachen, sind entweder schwach vertreten oder erst gerade im Aufbau befindlich. Die Untersuchung hat jedoch gezeigt, dass in diesen Gebieten teilweise (besonders in der weichen Materie) ein steigendes Interesse vorhanden ist und sich durch die katalytische Wirkung der SINQ sowie gerade im Hinblick auf die sich durch die nächste Generation Quellen (ESS) abzeichnenden neuen Möglichkeiten ein grosses Wachstumspotential ergibt.

Die zukünftigen Aktivitäten schweizerischer Forschergruppen umfassen das ganze Spektrum von “heute machbar” bis “heute unmöglich machbar”. Entsprechend wird die Spallationsneutronenquelle SINQ am PSI Villigen auch in Zukunft eine wichtige Rolle als “home base” spielen. Längerfristig ist der Zugang zu einer (gepulsten Spallations-) Neutronenquelle der dritten Generation mit einem Spitzenfluss, der den heute weltbesten Neutronenquellen (ILL, ISIS) um ca. zwei Grössenordnungen überlegen ist, anzustreben. Im Klartext heisst das ein klares “Ja” zur schweizerischen Beteiligung am Projekt der Europäischen Spallationsneutronenquelle ESS.

Eine weitere Aufgabe der Fachgruppen war es, die Eckdaten wie den  $q, \omega$ -Bereich und die angestrebte  $q$ - bzw. Energieauflösung für neu zu konstruierende Instrumente an der ESS grob festzulegen. Auch Forderungen an die Probenumgebung wurden nicht zentral, sondern fachgruppenspezifisch behandelt. Hier wurden klare Anforderungen an die zukünftigen Anlagen erarbeitet, und es ist deutlich geworden, wie wichtig

gerade neue und zum Teil extreme Probenumgebungen für die Zukunft der Neutronenstreuung sein werden.

Insgesamt können die von den verschiedenen Gruppen gemachten Aussagen über die zukünftige Nutzung von Neutronenquellen wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Bedeutung der SINQ als „home base“ für schweizerische Forschergruppen ist unbestritten. Dies setzt jedoch voraus, dass diese auch in Zukunft durch gezielte Ausbauschnitte gestärkt wird und das PSI entsprechend weiterhin in die SINQ investiert und sie langfristig als Projekt höchster Priorität behandelt.
- Es besteht nach wie vor ein grosser Bedarf an Strahlzeit am ILL. Allerdings setzt dies voraus, dass das vom wissenschaftlichen Rat des ILL empfohlene „Millennium-Programm“ auch zeitgerecht verwirklicht wird, denn nur dann ist das ILL für uns auch längerfristig von Interesse. Aus unserer Sicht wird deshalb für das ILL klar eine Vertragsbeibehaltung im Rahmen der bisherigen Nutzung für mindestens 10 weitere Jahre befürwortet.
- Der Bedarf an Strahlzeit bei ISIS ist weiterhin eher marginal, was hauptsächlich auf das Fehlen einer vertraglich (und finanziell) geregelten Nutzung durch schweizerische Forschergruppen zurückzuführen ist. Mit der Inbetriebnahme der ESS wird das Interesse an ISIS wohl ganz verschwinden.
- Eine schweizerische Beteiligung an einer europäischen Neutronenquelle der 3. Generation ist unabdingbar, wenn die schweizerischen Forscher (weiterhin) an der Weltspitze dabei sein wollen, denn nur durch eine solche Quelle werden sogenannte „cutting edge experiments“ durchgeführt werden können. Die ESS ist dabei klar die Quelle der Wahl, und für sie kann eine starke Nutzung durch schweizerische Forschergruppen vorausgesagt werden. Wir beantragen deshalb dem BBW eine angemessene schweizerische Beteiligung am Projekt ESS.
- Wird die ESS gebaut, so verliert die ebenfalls geplante AUSTRON Anlage gesamtschweizerisch jegliche Bedeutung. Sollte die ESS hingegen nicht realisiert werden, so könnte eine Partizipation bei AUSTRON, welches immerhin den 10-fachen Neutronenfluss von ISIS-II liefern soll, durchaus sinnvoll sein.