

17. Vorlesung

27.6.1991.

# Theorie der elastischen Neutronenstreuung

Elastische Streuung eines Neutrons an einem im Festkörper gebundenen Atomkern; Rückstoß kann vernachlässigt werden.

$$\begin{array}{c} \Downarrow \\ |\underline{k}| = |\underline{k}'| = \frac{2\pi}{\lambda} \end{array}$$

$\Uparrow$   $\Uparrow$   
Wellenvektor des  
ein- aus-  
laufenden Neutrons.

Gesamtwellenfunktion in großer Entfernung vom Streuzentrum:

$$\Psi(r, \theta, \phi) = A \left( e^{ikz} + f(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r} \right)$$

$\Uparrow$   $\Uparrow$   
einlaufende ebene Welle      auslaufende Kugelwelle  
 $\Uparrow$   
Streuamplitude

Entwicklung in partiellen Wellen ( $l=0, 1, 2, \dots$ ):

$\lambda \gg$  Kernradius (Reichweite des Kernpotentials)



Nur die s-Streuung muß berücksichtigt werden.

Die Absorption kann oft vernachlässigt werden.

Dann gilt:

$$f(\theta, \phi) = -b$$



Streulänge (reel)

Mit Absorption:

$$f(\theta, \phi) = -b + i \frac{\sigma_a}{2\lambda} \quad \leftarrow \text{totaler Absorptions-} \\ \text{wirkungsquerschnitt}$$

Differentieller Wirkungsquerschnitt:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f(\theta, \phi)|^2 = b^2$$

Totaler Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega = 4\pi b^2$$

Die Streulänge  $b$  beschreibt die Stärke der Streuung und hängt vom Kernpotential ab. Sie ist im allgemeinen für jedes Isotop verschieden.

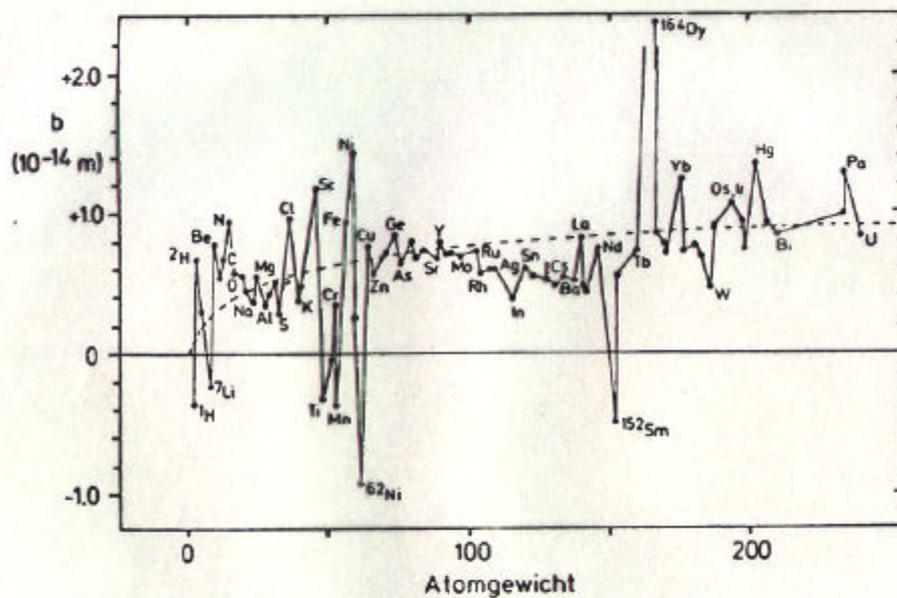
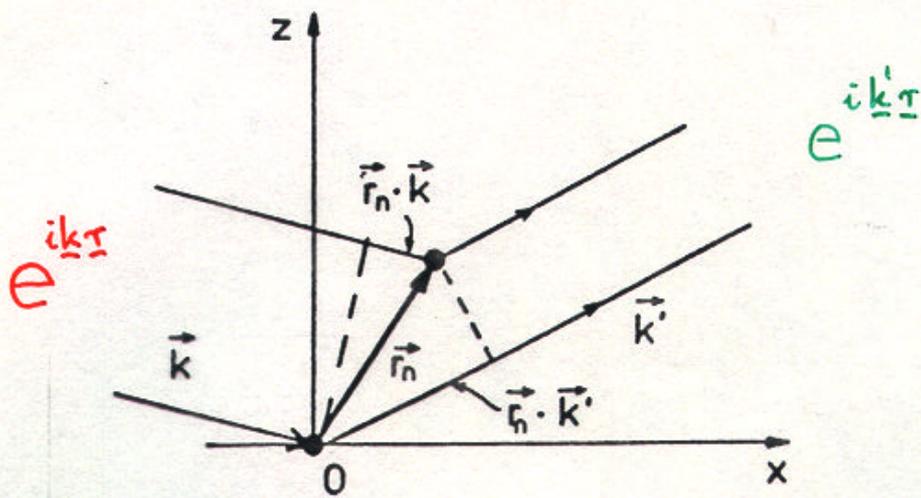


Abb. 10.7: Streulänge als Funktion der Atommasse. Die gestrichelte Linie entspricht der Potentialstreuung (JEF 81)  
 (ohne Isotopenangabe: Mittelwert)



**Abb. 10.8:**

Zur Berechnung des Phasenunterschieds eines am Punkt  $\vec{r}_n$  gestreuten Neutrons gegenüber einem am Ursprung gestreuten Neutrons

## Neutronenstreuung an kondensierter Materie

Jedes Neutron wird gleichzeitig an allen äquivalenten Streuzentren gestreut (der Zwischenzustand wird nicht beobachtet).  $\Rightarrow$  Die Streuung ist kohärent.

$\Rightarrow$  Die Streuamplituden werden aufsummiert  $\Rightarrow$  Phasendifferenz  $\Rightarrow$  Interferenz.

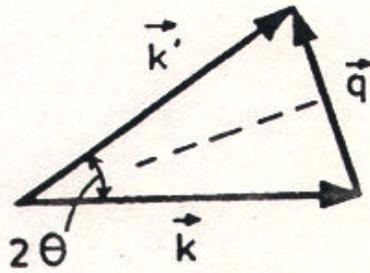
Phasenunterschied (Streuzentren am  $\underline{0}$  bzw.  $\underline{r}_n$ ):

$$\underline{k} \cdot \underline{r}_n - \underline{k}' \cdot \underline{r}_n = \underbrace{(\underline{k} - \underline{k}')}_{-\underline{q}} \cdot \underline{r}_n = -\underline{q} \cdot \underline{r}_n$$

Streuvektor:  $\underline{q} = \underline{k}' - \underline{k}$

Zusammenhang zwischen Streuwinkel  $\theta$  und Streuvektor  $q$ :

$$\sin \theta = \frac{q}{2k}$$



$$\sin \theta = \frac{q}{2k}$$

Abb. 10.9:

Zusammenhang zwischen dem Streuvektor  $\vec{q}$  und dem Streuwinkel  $2\theta$  für elastische Streuung ( $|\vec{k}'| = |\vec{k}|$ )

Kohärente Summe (Summe der Streuamplituden)  
in Richtung  $\underline{k}'$ :

$$f_c = \sum_n b_n e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n}$$

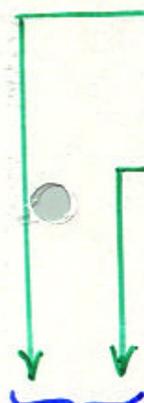


für alle Streuzentren

Gemessen wird in einem elastischen Streuexperiment  
der differentielle Wirkungsquerschnitt  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  als  
Funktion des Streuvektors  $\underline{q}$ .

Einfachster Fall:

- alle Atome gehören zum gleichen Isotop und der Kernspin ist Null; **Kohärenz**
- die Einheitszelle enthält nur ein Atom; **Bravais-Gitter**
- die Atomkerne sind in Ruhe. **T = 0**



$\Rightarrow b_n = b$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f_c|^2 = b^2 \left| \sum_n e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n} \right|^2$$

Falls Origo in einem Gitterpunkt, dann

$$\underline{T}_n = u_n \underline{a} + v_n \underline{b} + w_n \underline{c}$$

ganze Zahlen

primitive  
Translationsvektoren

Reziproke Gittervektoren:

$$\underline{G}_{hkl} = h \underline{A} + k \underline{B} + l \underline{C}$$

ganze Zahlen  
(Miller'sche Indizes)

$$\underline{A} = \frac{2\pi(\underline{b} \times \underline{c})}{\underline{a} \underline{b} \underline{c}}; \quad \underline{B} = \frac{2\pi(\underline{c} \times \underline{a})}{\underline{a} \underline{b} \underline{c}}; \quad \underline{C} = \frac{2\pi(\underline{a} \times \underline{b})}{\underline{a} \underline{b} \underline{c}}$$

$$\underline{a} \underline{b} \underline{c} = \underline{a} (\underline{b} \times \underline{c}) = (\underline{a} \times \underline{b}) \underline{c}$$

$$\underline{a} \underline{A} = \underline{b} \underline{B} = \underline{c} \underline{C} = 2\pi$$

$$\underline{a} \underline{B} = \underline{a} \underline{C} = \underline{b} \underline{A} = \underline{b} \underline{C} = \underline{c} \underline{A} = \underline{c} \underline{B} = 0$$

$$\underline{G}_{hkl} \underline{T}_n = 2\pi (\underbrace{u_n h + v_n k + w_n l}_{\text{ganze Zahl } (m)})$$

$$e^{-i \underline{G}_{hkl} \underline{T}_n} = e^{-2\pi m i} = 1$$

$$\left| \sum_n e^{-i \underline{G}_{hkl} \underline{r}_n} \right|^2 = \left( \sum_n 1 \right)^2 = N^2$$

$N$ : Anzahl der Atome

$$\left| \sum_n e^{-i \underline{q} \underline{r}_n} \right|^2 = \begin{cases} N^2 & \text{wenn } \underline{q} = \underline{G}_{hkl} \\ \approx 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

(Bragg-Bedingung)

Breite der Bragg-Linie:  $\sim \frac{1}{N}$

Differentieller Wirkungsquerschnitt der **elastischen, kohärenten** Neutronenstreuung an einem **Bravais-Gitter** bei  $T=0$ :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \sim b^2 N \delta(\underline{q} - \underline{G}_{hkl})$$

Für Atomkerne mit Spin  $\neq 0$  gibt es zwei Streulängen:

$$b_+ \uparrow \uparrow \neq b_- \uparrow \downarrow$$

$n$       Kern

Statistisch verteilte Kernspineinstellungen  
und/oder statistisch verteilte Isotopen:

Streuungszentren nicht äquivalent  $\Rightarrow$  **inkohärente  
Streuung**. (Die Streuintensitäten werden auf-  
summiert.) Die inkohärente Neutronenstreuung  
ist **winkelunabhängig**.

Kohärenter Beitrag  $\div$  mittlere Streulänge

$$\bar{b} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N b_n$$

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{coh.}} \sim \bar{b}^2 N \delta(\underline{q} - \underline{G}_{hkl})$$

Inkohärente Streuung:

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{incoh.}} = N (\bar{b}^2 - \bar{b}^2)$$

$$\bar{b}^2 - \bar{b}^2 = \frac{1}{N} \left[ \sum_{n=1}^N b_n^2 - \left( \sum_{n=1}^N b_n \right)^2 \right]$$

Tab. 10.2: Streuquerschnitte einiger Atome (in barn). Bei den Elementen ohne Angabe der Massenzahl ist der Wert für das natürliche Isotopengemisch angegeben (BAC 75)

Kern	Kernspin	$\sigma_{\text{coh.}}$	$\sigma_{\text{incoh.}}$
$^1\text{H}$	1/2	1,8	79,7
$^2\text{H}$	1	5,6	2,0
$^9\text{Be}$	3/2	7,5	0,0
$^{27}\text{Al}$	5/2	1,5	0,0
Ca		2,8	0,4
Fe		11,3	0,5
Ni		13,3	4,7
Cu		7,3	1,2
Zn		4,1	0,1
Pd		4,5	0,3
W		2,9	2,8
Pb		11,1	0,3

Strukturbestimmung an deuterisierter  
Proben möglich.

## Debye - Waller - Faktor

$T > 0 \Rightarrow$  thermische Bewegung

$$f = e^{-2W} = e^{-q^2 \langle u^2 \rangle / 3}$$

↑  
mittleres Auslenkungsquadrat

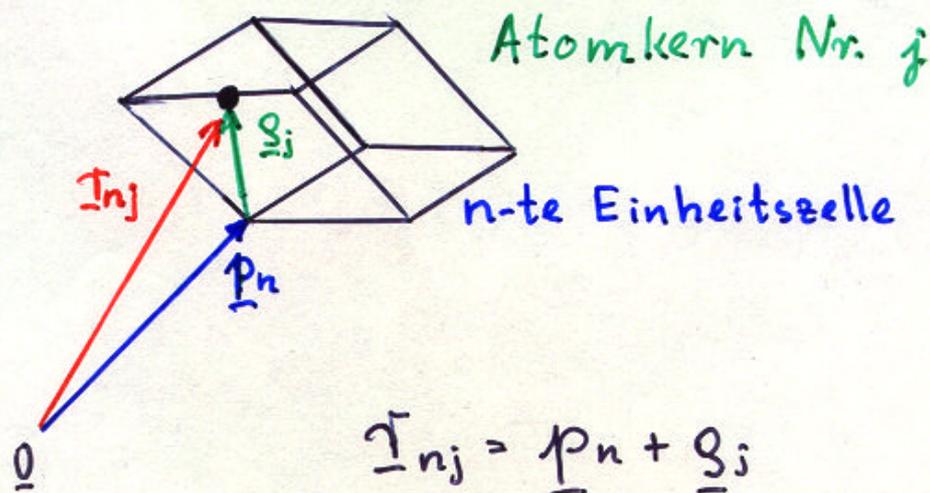
Die Intensität des Bragg-Reflexes (hkl):

$$I_{hkl} = e^{-2W} I_{hkl}^0$$

↑  
Intensität bei  $T=0$

## Geometrischer Strukturfaktor

Wenn die Einheitszelle nicht nur ein Atom enthält (kein Bravais-Gitter), dann gibt es Interferenz auch innerhalb der Einheitszelle.



## Strukturbestimmung durch elastische Neutronenstreuung

Verfahren analog zur Röntgen-Streuung.

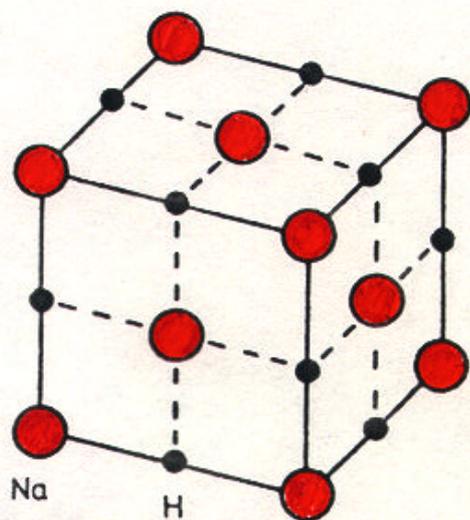
- Vorteile:
- geeignet auch für leichte Elemente
  - geeignet auch für Bestimmung der magnetische Struktur

- Nachteile:
- Neutronenquelle (Reaktor) notwendig
  - geringere Auflösung

### Beispiel: Gitterstruktur von NaH

Geometrischer Strukturfaktor (ohne Debye-Waller-Faktor):

$$\begin{aligned} F(hkl) &= b(\text{Na}) \left[ 1 + e^{-i\pi(k+l)} + e^{-i\pi(h+k)} + e^{-i\pi(h+l)} \right] + \\ &+ b(\text{H}) \left[ e^{-i\pi(h+k+l)} + e^{-i\pi h} + e^{-i\pi k} + e^{-i\pi l} \right] = \\ &= 4b(\text{Na}) + 4b(\text{H}) \quad \text{für } h, k, l \text{ gerade} \\ &4b(\text{Na}) - 4b(\text{H}) \quad \text{für } h, k, l \text{ ungerade} \\ &0 \quad \text{sonst} \end{aligned}$$



Na:

$u$	$v$	$w$
0	0	0
0	$1/2$	$1/2$
$1/2$	0	$1/2$
$1/2$	$1/2$	0

Abb. 10.10:

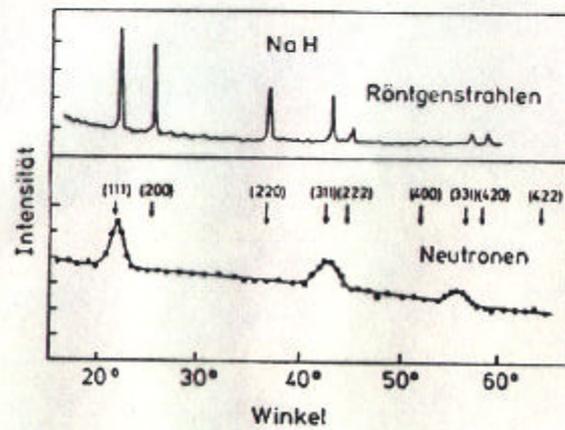
Modell eines NaH-Kristalls

H:

$u$	$v$	$w$
$1/2$	$1/2$	$1/2$
$1/2$	0	0
0	$1/2$	0
0	0	$1/2$

$b(\text{Na}) \gg b(\text{H})$

$b(\text{Na}) \approx b(\text{H})$



$h, k, l$  gerade  
 $h, k, l$  ungerade

$h, k, l$  ungerade

Abb. 10.11: Röntgen- und Neutronenbeugung am kubisch-flächenzentrierten NaH. Nach (SHU 48) und (HEL 76)

# Magnetische Strukturbestimmung

Streulänge für magnetische Streuung:

$$b = b_0 \pm C \bar{\mu}$$

+ parallele  
- antiparallele    Spinstellung

↑                    ↑

Streulänge        Mittelwert des  
ohne magne-     magnetischen  
tische Streuung    Momentes

Ferromagnetische Kristalle:

alle magnetische Momente parallel  $\Rightarrow$   
es gibt nur eine Streulänge  $\Rightarrow$  chemisches  
und magnetisches Gitter sind identisch  $\Rightarrow$   
im Beugungsbild treten keine neue Reflexe  
auf.

Antiferromagnetische Kristalle:

magnetische Momente nur im selben Untergitter parallel  $\Rightarrow$  für eine bestimmte Spinstellung des Neutrons für jedes Untergitter andere Streulänge  $\Rightarrow$  Gittervervielfachung  $\Rightarrow$  im Beugungsbild treten neue Reflexe (Überstruktur) auf.

# Beispiel: Magnetische Struktur von ferromagnetischem Eisen

Eisen: kubisch-raumzentriert

$u$	$v$	$w$
0	0	0
$1/2$	$1/2$	$1/2$

Strukturfaktor:

$$F(hkl) = b(\text{Fe}) [1 + e^{-i\pi(h+k+l)}] =$$

$$= 2b(\text{Fe}) \text{ für } h+k+l = \text{gerade}$$

$$0 \text{ für } h+k+l = \text{ungerade}$$

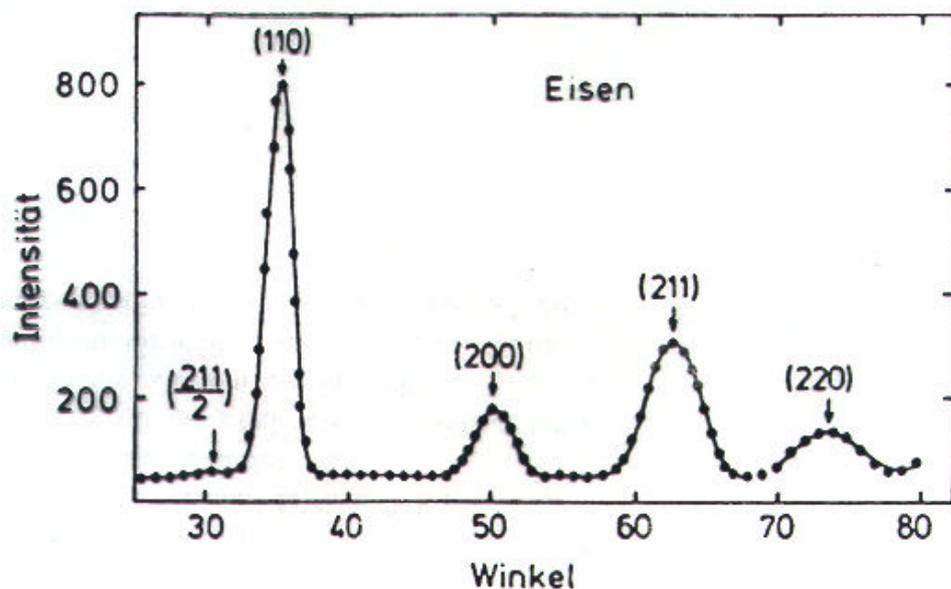


Abb. 10.12: Neutronenbeugung an Fe. Nach (SHU 51b)

Beispiel: MnO

$T_N = 120 \text{ K}$

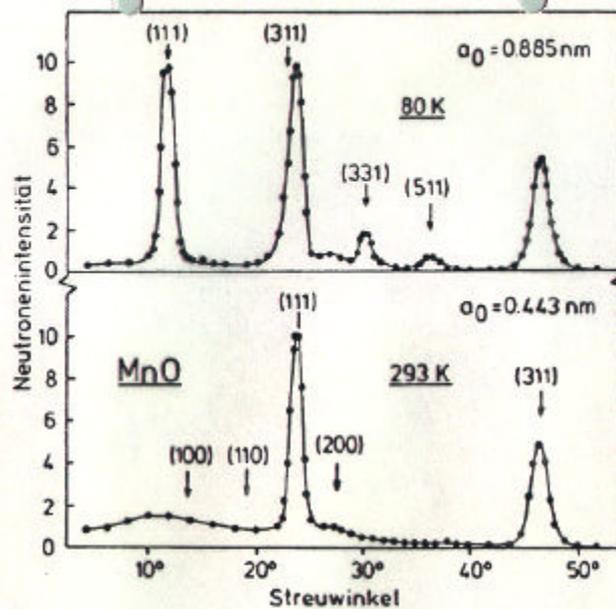


Abb. 10.13: Neutronenstreuung an MnO bei 80 K bzw. 293 K (unter- und oberhalb der Néel-Temperatur  $T_N = 120 \text{ K}$ ). Aufgetragen ist die Neutronenintensität als Funktion des Streuwinkels. Das obere Bild zeigt zusätzliche Reflexe, die einer magnetischen Einheitszelle mit der doppelten Dimension der chemischen Einheitszelle entsprechen (SHU 51a)

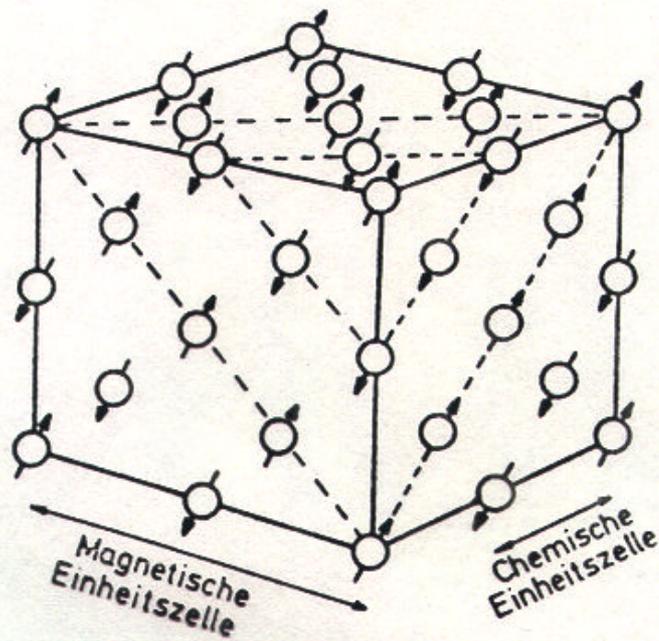


Abb. 10.14:

Magnetische Struktur von MnO. Es sind nur die Mn-Atome und deren Spinstellung gezeichnet (MnO besitzt NaCl-Struktur, d.h. zwei ineinander geschachtelte kubisch-flächenzentrierte Kristallgitter). Die magnetische Einheitszelle ist doppelt so groß wie die chemische Einheitszelle (SHU 51a, ROT 58)

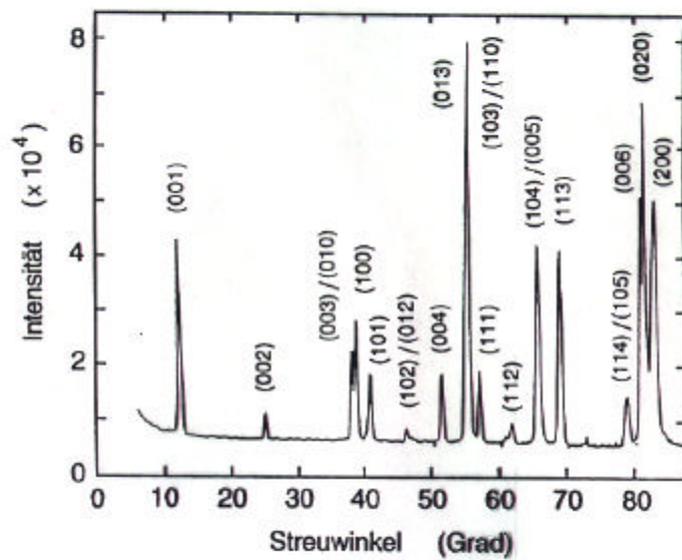


Abb. 10.12 Neutronendiffraktogramm einer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> Pulverprobe. Die Indizierung (hkl) bezieht sich auf eine orthorhombische Einheitszelle

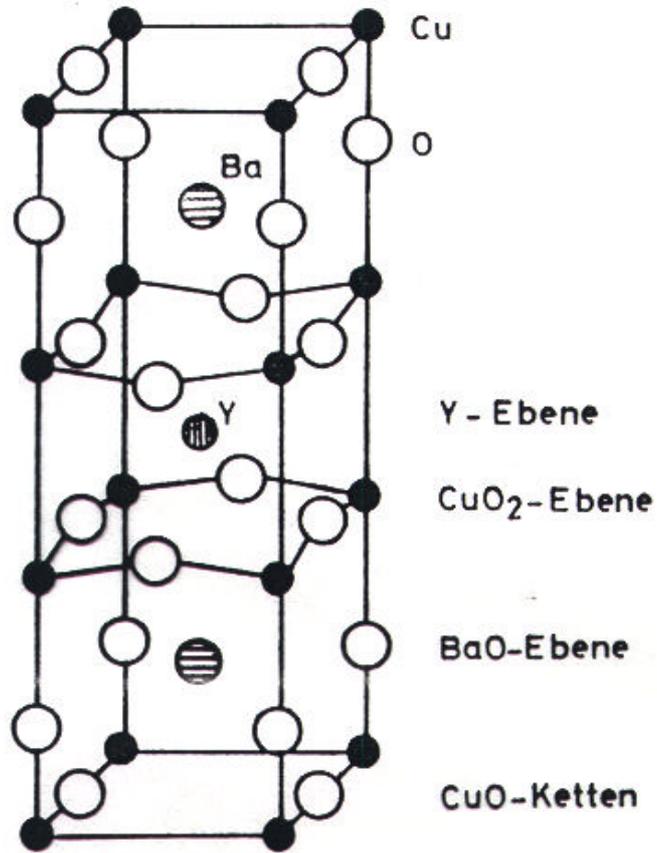


Abb. 10.13  
 Einheitszelle des  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$   
 Supraleiters

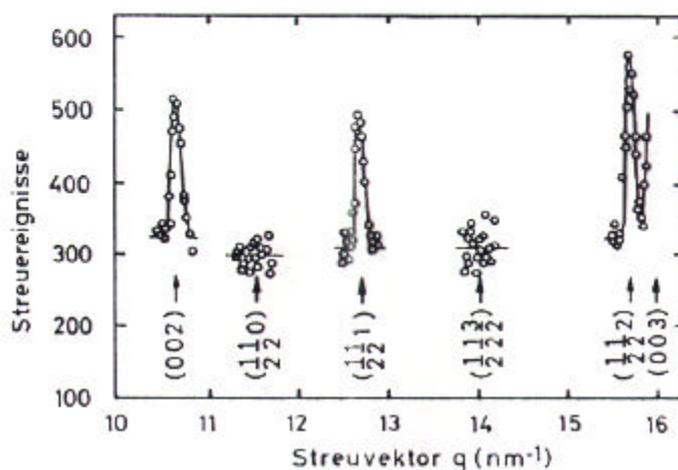


Abb. 10.14 Ausschnitt aus einem Neutronendiffraktogramm einer  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,15}$  Pulverprobe (TRA 88). Die Streuraten sind hier statt über dem Streuwinkel über dem übertragenen Impuls aufgetragen. Gezeigt ist der Ausschnitt zwischen dem (002)- und (003)-Reflex. Das Auftreten des  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 1)$ -Reflexes ist ein eindeutiges Zeichen für eine Überstruktur, die in dem vorliegenden Fall magnetischen Ursprungs ist. Das Fehlen des  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$ - und  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 3/2)$ -Reflexes gibt Hinweise auf die Anordnung der magnetischen Momente in der Einheitszelle. Die magnetischen Momente sind an den Cu-Atomen in den  $\text{CuO}_2$  Ebenen lokalisiert und liegen in dieser Ebene