

Fortgeschrittenenpraktikum für Bachelorstudenten der Physik

Versuch 5

Der Mößbauereffekt

März, 2010

Voraussetzungen

- Doppler-Effekt
- Wechselwirkung von Photonen mit Materie
- Grundlagen der Quantenmechanik
- Grundlagen der Festkörperphysik (Gitterschwingungen)
- Strahlenschutz

Versuchsziel

- Spektroskopie mittels des Mössbauer-Effekts
- Bestimmung der natürlichen Linienbreite eines Übergangs
- Spektroskopische Messung quantenmechanischer Phänomene

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|-----------|
| 1 Die Physik des Mössbauer-Effekts | 3 |
| 1.1 γ -Emission freier Atomkerne | 3 |
| 1.2 Strahlende Kerne im Kristallgitter | 3 |
| 1.3 Spektroskopische Anwendungen | 4 |
| 1.4 Quantenmechanische Betrachtung | 5 |
| 1.5 Linienprofil und Linienbreite | 6 |
| 1.5.1 Lorentzform einer Spektrallinie | 6 |
| 1.5.2 Effektive Linienform im Absorptionsspektrum | 7 |
| 1.6 Fe^{57} als Mössbauer-Isotop | 9 |
| 2 Spektroskopische Messungen | 11 |
| 2.1 Magnetische Hyperfeinstrukturaufspaltung | 11 |
| 2.2 Elektrische Quadrupolaufspaltung | 12 |
| 2.3 Isomerieverschiebung | 14 |
| 3 Der Versuchsaufbau zur Mössbauerspektroskopie | 14 |
| 3.1 γ -Spektrometer | 15 |
| 3.2 Bewegungs- und Steuer-Einheit | 15 |
| 3.3 Laser-Kalibrator | 16 |
| 3.4 Vielkanalanalysator: Spektrenaufnahme | 17 |
| 3.5 Auslese und Auswertung mittels PC | 17 |
| 4 Aufgaben | 17 |
| 5 Versuchsdurchführung | 19 |
| 5.1 Verkabelung und Inbetriebnahme | 19 |
| 5.2 Analyse des Quellenspektrums | 19 |
| 5.3 Messung des Extinktionswirkungsquerschnitts | 19 |
| 5.4 Aufnahme der Absorptionsspektren | 20 |
| 5.4.1 Aufnahme des Einlinienspektrums | 20 |
| 5.4.2 Messung der magnetischen Hyperfeinstruktur | 20 |
| 5.4.3 Messung der elektrischen Quadrupolaufspaltung | 20 |
| 6 Hinweise zur Auswertung | 20 |

1 Die Physik des Mössbauer-Effekts

Der Mössbauer-Effekt bezeichnet die Erscheinung der rückstossfreien Kernresonanzabsorption. Dieser Prozess und die damit verbundenen Effekte werden zunächst anhand eines freien Atoms erklärt und später auf Atomkerne, die in einem Kristallgitter eingebettet sind, übertragen.

1.1 γ -Emission freier Atomkerne

Angeregte Atomkerne können z.B. als Folge eines vorangegangenen α - oder β -Zerfalls ihre Energie in Form von γ -Strahlung abgeben. Die bei einem bestimmten Übergang emittierten Photonen bilden keine absolut scharfe Linie, sondern besitzen eine charakteristische Energieverteilung, deren Form durch mehrere Effekte beeinflusst wird:

- Die endliche Lebensdauer des angeregten Zustands bewirkt gemäß der Unschärferelation für Zeit und Energie ein Linienprofil, welches als "Lorentz-Kurve" (auch: Breit-Wigner oder Cauchy-Verteilung) bezeichnet wird. Diese "natürliche Linienbreite" ist durch die Natur des Kernübergangs bedingt und daher prinzipiell nicht zu umgehen.
- Die Emission des γ -Quants ist kinematisch ein Zweikörperzerfall, bei dem Energie und Impuls erhalten sind. Nimmt man an, dass der angeregte Kern vor dem Zerfall in Ruhe ist, so müssen auch nach dem Zerfall die Summe der Impulse verschwinden, d.h. Kernimpuls P und γ -Impuls p sind betragsmäßig gleich. Die Kernbewegung (Kernmasse M) kann in guter Näherung klassisch beschrieben werden, d.h. die aufgenommene Rückstoßenergie ist

$$E_R = \frac{P^2}{2M} = \frac{p^2}{2M} = \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2} \approx \frac{E_0^2}{2Mc^2}. \quad (1)$$

Dabei wurde $p = E_\gamma/c$ für das Photon benutzt. Im letzten Schritt wurde für E_γ näherungsweise die Zerfallsenergie E_0 eingesetzt, was dadurch gerechtfertigt wird, daß $E_R \ll E_0$ gilt. Die resultierende Emissionslinie ist daher um die Energie der Rückstoßverschiebung verschoben. Mit einer gleichen Argumentation folgt, daß die Absorptionslinie um denselben Betrag zu höheren Energien verschoben ist.

- Die Emittieratome haben in der Regel eine thermische Geschwindigkeit, welche durch eine Maxwell-Verteilung gegeben ist. Die Geschwindigkeitskomponente in Emissionsrichtung des Photons bewirkt eine Linienverschiebung auf Grund des Doppler-Effekts: die sogenannte temperaturabhängige Dopplerverbreiterung.

Obige Überlegungen (siehe Abb. 1) gelten so für einzelne freie Kerne wie sie z.B. in einem Gas vorliegen.

1.2 Strahlende Kerne im Kristallgitter

Im Rahmen seiner Promotion untersuchte Rudolf Mössbauer im Jahr 1957 die Resonanzabsorption von Ir^{191} . Da die Rückstoßverschiebung temperaturunabhängig ist, die Dopplerverbreiterung aber mit abnehmender Temperatur kleiner wird, erwartete man eine Verkleinerung des Überlapps von Emissions- und Absorptionslinie. Somit sollte auch die Resonanzabsorption mit sinkender Temperatur geringer werden. Mössbauer beobachtete jedoch eine Zunahme der Resonanzabsorption mit abnehmender Temperatur. Er konnte diesen Effekt durch die Modifikation einer Theorie von W.E. Lamb erklären, der diese ursprünglich zur Beschreibung der Resonanzabsorption langsamer Neutronen in Kristallen entwickelt hatte.

Die Grundidee ist die Berücksichtigung des Kristallgitters, in das die radioaktiven Atome eingebaut sind. Quantenmechanisch betrachtet besitzt das Gitter diskrete Schwingungszustände, welche diskreten Energie-Niveaus entsprechen. Nur, wenn die auf den Kern zu übertragende Rückstoßenergie einem Übergang entspricht, kann der Kern die Energie aufnehmen. Andernfalls nimmt der Kristall als Ganzes den Impuls auf. Auf Grund seiner großen Masse wird praktisch keine Energie übertragen, da $E_R \sim 1/M$. Das Photon wird also in diesem Fall mit der Zerfallsenergie E_0 emittiert.

Die Energieniveaus eines Festkörpers sind im unteren Bereich, welcher bei niedrigen Temperaturen praktisch ausschließlich besetzt ist, gut getrennt, und der Rückstoß kann in der Regel nicht von einem

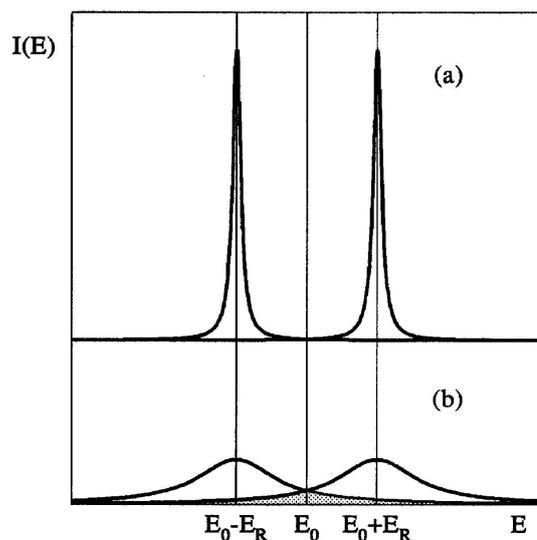


Abbildung 1: a.) Die Emissionslinie ist durch die Rückstoßverschiebung so stark gegen die Absorptionslinie versetzt, daß keine Überlappung/Resonanzabsorption vorliegt. Das Material, welches die Strahlung verursacht, ist also für die eigene Strahlung transparent. b.) Die Linienverbreiterung durch den thermischen Dopplereffekt verursacht einen geringen Überlapp, wobei jedoch die Intensität einer möglichen Resonanzabsorption gering bleibt.

einzelnen Kern/Atom aufgenommen werden. Im oberen Bereich überlappen diese quasi zum Kontinuum, womit beliebige Rückstoßenergien absorbiert werden können. Charakteristisch für einen Kristall ist die sogenannte Einstein-Energie E_E , die minimale Anregungsenergie für Gitterschwingungen (siehe Abb. 2). Da bei niedrigen Energien (wo zudem keine Gitterschwingungen angeregt werden können) sowohl die Dopplerverbreiterung als auch die Rückstoßverschiebung verschwinden, kann man die unverschobene Linie in natürlicher Breite beobachten. Absorptions- und Emissionslinie sind identisch, d.h. Resonanzabsorption ist möglich.

1.3 Spektroskopische Anwendungen

Das Prinzip aller typischen Mössbauer-Messungen bis heute ist in Abbildung 8 dargestellt: Eine (gekühlte) Quelle emittiert einen Teil seiner Strahlung rückstoßfrei mit der natürlichen Linienbreite. Diese sehr scharfe Linie wird durch das Bewegen der Quelle gegen einen Absorber leicht “verstimmt” (Dopplereffekt). Dadurch kann in einem kleinen Energiebereich um die Linienenergie die Absorption des Probenmaterials in Abhängigkeit von der Energie gemessen werden. Benutzt man zum Beispiel das gleiche Material für Quelle und Absorber, so kann die natürliche Linie und deren Breite vermessen werden.

Bis heute sind über 80 Mössbauer-Isotope bekannt, unter denen die 14.4 keV-Linie von Fe^{57} besondere Bedeutung erlangt hat, da hier der Effekt bereits bei Zimmertemperatur ausgeprägt ist, was den experimentellen Aufwand erheblich reduziert. Eine Vielzahl von Anwendungen sind in diversen Wissenschaftszweigen entwickelt worden:

- Kernphysik: Messung elektromagnetischer Momente angeregter Kerne durch Spektroskopie der Linienaufspaltung (\rightarrow Versuchsteile zur Messung der Hyperfeinstrukturaufspaltung).
- Relativitätstheorie: Nachweis der Gravitationsrotverschiebung, d.h. der “Masse” des Photons (Pound-Rebka-Experiment, 1960).
- Festkörperphysik: Untersuchung magnetischer Phasenübergänge.
- Chemie: Strukturuntersuchungen, zerstörungsfreie Elementidentifikation, Unterscheidung von Elektronenkonfigurationen (siehe Abschnitt 2.3: Isomerieverschiebung).

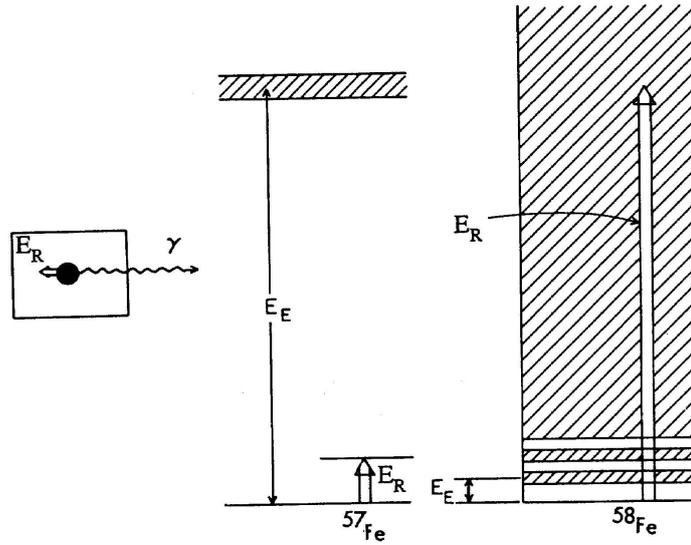


Abbildung 2: Verhältnis der Rückstoßenergie E_R zur Einstein-Energie E_E . Links: 14.4 keV Linie von Fe^{57} , rückstofffreie Emission, rechts: 800 keV Linie von Fe^{58} , Gitterschwingungen können angeregt werden, wodurch die Emissionslinie verschoben ist.

- Biologie: Identifikation von Wertigkeit und Bindungszustand von Eisen in eisenhaltigen Proteinen.

1961 erhielt Rudolph Mössbauer für seine Entdeckung den Nobelpreis in Physik. Wegener [1] bemerkt dazu: “Der Mössbauereffekt verdankt [...] seinen Ruhm wohl weniger der ihm zugrundeliegenden physikalischen Idee als vielmehr dem breiten Spektrum der durch ihn möglich gewordenen Experimente.”

1.4 Quantenmechanische Betrachtung

Entscheiden für das Auftreten der rückstoßfreien Mössbauerlinie bei einer kristallinen γ -Quelle ist die Frage, ob der Schwingungszustand des Gitters bei der Emission des Photons geändert wird oder nicht. Die Quantentheorie des Gitters ergibt, daß die Schwingungsenergie eines kubischen Kristalls mit N Gitterbausteinen als Summe $3N$ harmonischer Oszillatoren der Frequenzen Ω_S geschrieben werden kann:

$$E_G = \sum_{S=1}^{3N} \hbar \Omega_S \left(n_S + \frac{1}{2} \right). \quad (2)$$

Der Schwingungszustand eines Gitters wird demnach von einem Satz von Quantenzahlen $\{n_S\}$ mit $S = 1 \dots 3N$ vollständig beschrieben. Bei der Emission eines γ -Quants ändert sich unter Umständen die Gitterenergie um ΔE_G , was eine Verschiebung der Quantenzahlen $\{n_S\} \rightarrow \{n'_S\}$ eines oder mehrerer Oszillatoren entspricht:

$$\Delta E_G = \sum_{S=1}^{3N} \hbar \Omega_S (n_S - n'_S). \quad (3)$$

Diese Energieverlagerung erhöht oder erniedrigt dann entsprechend die Energie des emittierten Quants:

$$E_\gamma = E_0 - \Delta E_G = \hbar \omega_0 - \sum_{S=1}^{3N} \hbar \Omega_S (n_S - n'_S). \quad (4)$$

Die möglichen γ -Energien E_γ werden dadurch diskretisiert, daß nur endlich viele Gitterfrequenzen Ω_S existieren und die Differenz $(n_S - n'_S)$ ganzzahlig eingeführt wurde. Der Abstand der Energieniveaus ist allerdings kleiner als die natürliche Linienbreite, da man aufgrund der großen Anzahl von Oszillatoren ein kontinuierliches Spektrum beobachten kann.

Sei nun $W(\{n_S\} \rightarrow \{n'_S\})$ die Wahrscheinlichkeit, daß bei einer Photon-Emission das Gitter vom Zustand $\{n_S\}$ nach $\{n'_S\}$ übergeht und $G(T, \{n_S\})$ die normierte Wahrscheinlichkeit, das Gitter bei der Temperatur T im Zustand $\{n_S\}$ vorzufinden. Dann ist

$$f(T) = \sum_{\{n_S\}} \sum_{\{n_S\} \neq \{n'_S\}} G(T, \{n_S\}) \cdot (1 - W(\{n_S\} \rightarrow \{n'_S\})) \quad (5)$$

$$= \sum_{\{n_S\}} G(T, \{n_S\}) \cdot W(\{n_S\} \rightarrow \{n_S\}) \quad (6)$$

der Anteil der rückstoßfreien Emissionen, bei denen der Gitterzustand unverändert bleibt. Entsprechend besitzen die emittierten Quanten die gesamte Übergangsenergie E_0 und tragen zur unverschobenen Mössbauerlinie bei. Da G und W normiert sind, gilt: $0 \leq f(T) \leq 1$. Die temperaturabhängige Funktion T wird Mössbauer-Lamb-Faktor genannt (analog zum Debye-Waller-Faktor bei der Bragg-Reflexion von Röntgenstrahlen an Kristallgitterschichten).

Sowohl $G(T, \{n_S\})$ als auch $W(\{n_S\} \rightarrow \{n'_S\})$ können im Prinzip aus quantentheoretischen Rechnungen bestimmt werden. Für die Berechnung von $G(T, \{n_S\})$ benötigt man ein Modell für das Schwingungsverhalten eines Gitterbausteins im Kristall, genauer das Frequenzspektrum $Z(\Omega_S)d\Omega_S$ der Gitterfrequenzen, wobei $Z(\Omega_S)$ als quasi-kontinuierlich anzusehen ist. Ein sehr einfaches Gittermodell ist das Einstein-Modell, bei dem alle Oszillatorfrequenzen gleich der Einsteinfrequenz sind. Realistischer ist das Debye-Modell mit einem Frequenzspektrum $Z_D(\Omega) \sim \Omega^2$. Um Divergenzen zu vermeiden, muß eine Abschneidefrequenz Ω_{\max} eingeführt werden. Oberhalb dieser gilt $Z_D(\Omega > \Omega_{\max}) = 0$ gilt. Diese Obergrenze wird mittels einer charakteristischen Debye-Temperatur $\theta_D = \hbar\Omega_{\max}/k$ beschrieben. Aufwendige Berechnungen zur Bestimmung von Z_D finden sich in Modellbeschreibungen, die eine elastische Bindung der Gitterbausteine zum nächsten (und übernächsten) Nachbarn annehmen. Für kleine Temperaturen $T \ll \theta_D$ ist das Debye-Modell eine gute Näherung. Man erhält z.B. den Anteil rückstoßfreier Emissionen für Atome im artetigen kubischen Gitter

$$f_D = \exp \left\{ -\frac{3(\hbar\omega_0)^2}{4Mc^2k\theta_D} \left[1 + \frac{2\pi^2T^2}{3\theta_D^2} \right] \right\}. \quad (7)$$

$f_D(T)$ ist stark temperaturabhängig und besitzt bei $T = 0$ ein Maximum. Das Auftreten der unverschobenen emittierten γ -Linie mit natürlicher Breite und hoher Intensität bezeichnet man als den Mössbauereffekt.

1.5 Linienprofil und Linienbreite

1.5.1 Lorentzform einer Spektrallinie

Die Strahlung angeregter Kerne, die gemäß des Zerfallsgesetz $n \sim e^{-t/\tau}$ Strahlung emittieren, hat eine Energieverteilung der Breite Γ . Diese ist mit der Lebensdauer τ durch die Unschärferelation verknüpft:

$$\tau \cdot \Gamma = \hbar. \quad (8)$$

Durch Fouriertransformation des Zeitverhaltens der Amplitude gewinnt man das Frequenzspektrum der Strahlung. Für die Intensität ergibt sich die sogenannte "Lorentzkurve"

$$I(\omega) = I_0 \frac{\gamma^2}{\hbar^2(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \quad (9)$$

Die Maximalintensität dieser Kurve ist $I(\omega_0) = I_0$ und die Breite auf halber Höhe (FWHM) beträgt $\Gamma = 2\gamma$. Eine alternative Parametrisierung hat nur γ und nicht γ^2 im Zähler. Die dadurch beschriebene Linienform ist identisch, allerdings kann in diesem Fall I_0 nicht mehr als Maximalintensität interpretiert werden, da $I(\omega_0) = I_0/\gamma$. Die Gesamtintensität der Linie aus Gleichung 9 ist durch das Integral über den gesamten Frequenzbereich gegeben:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega) d\omega = \frac{I_0\gamma\pi}{\hbar} \quad (10)$$

In der weiteren Anwendung sei die Normierung

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega) d\omega = f(T) \quad (11)$$

gewählt, so daß mit Gleichung 9 gilt:

$$I(\omega) = \frac{\hbar f(T)}{2\pi} \frac{\Gamma}{\hbar^2(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2/4} \quad (12)$$

1.5.2 Effektive Linienform im Absorptionsspektrum

Das gesamte Emissionsspektrum $I_{\text{tot}}(\omega)$ einer Mössbauerlinie kann in einen lorentzförmige Anteil $I(\omega)$ (nach Formel 9) und einen quasi-kontinuierlichen Untergrund von Nebenlinien $K(\omega)$ unterteilt werden. Der qualitative Verlauf von $I_{\text{tot}}(\omega) = I(\omega) + K(\omega)$ ist in Abbildung 3 dargestellt. I_{tot} sei normiert, d.h.

$$\int I_{\text{tot}} = 1. \quad (13)$$

Im Bereich "RES" dominiert die eigentliche Mössbauerlinie $I(\omega)$ das Spektrum, so daß mit Gleichung

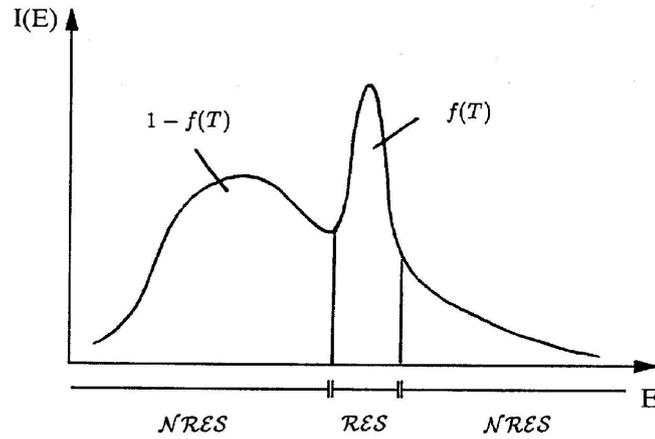


Abbildung 3: Gesamtes Emissionsspektrum einer kristallinen γ -Quelle. Die Mössbauerlinie im Bereich "RES" ist stark untersetzt und verbreitert dargestellt.

11 folgt:

$$\int_{RES} I_{\text{tot}}(\omega) d\omega = \int I(\omega) d\omega = f(T). \quad (14)$$

Mit Gleichung 13 ergibt das Integral außerhalb der Mössbauerlinie

$$\int_{NRES} I_{\text{tot}}(\omega) d\omega = \int_{NRES} K(\omega) d\omega = 1 - f(T). \quad (15)$$

Für eine mit der Geschwindigkeit v bewegten Quelle verschiebt sich die Frequenz der in Bewegungsrichtung beobachteten Quanten durch den Dopplereffekt gemäß

$$\omega_0 \rightarrow \omega_0(1 + v/c). \quad (16)$$

Für den breiten und nur langsam mit ω_0 variierenden Untergrund $K(\omega)$ ist dies auf Grund der kleinen Verschiebungen zu vernachlässigen. Für die Position des eigentlichen Mössbauerpeak ist dies jedoch essentiell und die Intensitätsverteilung $I(\omega)$ ändert sich mit der Geschwindigkeit (vgl. Formel 12):

$$I(v, \omega) = \frac{\hbar f(T)}{2\pi} \frac{\Gamma}{\hbar^2(\omega - \omega_0(1 + v/c))^2 + \Gamma^2/4}. \quad (17)$$

Die Strahlung der bewegten Quelle treffe nun auf einen ruhenden Absorber (v ist demnach die Relativgeschwindigkeit von Quelle und Absorber). Als Maß der Absorption definiert man die relative Zählrate

$$R(v) = \frac{Z(v)}{Z(\text{ohne Absorber})} \quad (18)$$

wobei $Z(v)$ die geschwindigkeitsabhängige Zählrate eines Zählers hinter dem Absorber darstellt. Die frequenzabhängige Durchlasswahrscheinlichkeit $D(\omega)$ eines Absorbers der Dicke d , der Atomdichte n und dem Absorptionswirkungsquerschnitts $\sigma(\omega)$ pro Atom kann geschrieben werden als

$$D(\omega) = e^{-dn\sigma(\omega)}, \quad \text{mit } 0 \leq D(\omega) \leq 1. \quad (19)$$

Der Wirkungsquerschnitt σ für die Absorption eines γ -Quants im Absorbermaterial setzt sich aus einem frequenzunabhängigen Anteil σ_{ex} (Extinktion durch Photoeffekt und Streuung an der Atomhülle) und einem frequenzabhängigen Anteil $\sigma_{\text{RES}}(\omega)$ für die Kernresonanzabsorption zusammen. Somit ergibt sich für die Durchlaß-Wahrscheinlichkeit:

$$D(\omega) = e^{-dn\sigma_{\text{ex}}} \cdot e^{-dn\sigma_{\text{RES}}(\omega)} \quad (20)$$

$$= D_{\text{ex}} \cdot D_{\text{RES}}(\omega) \quad (21)$$

Mit den Normierungen von I_{tot} und $D(\omega)$ folgt die relative Zählrate

$$R(v) = \int I_{\text{tot}}(v, \omega) D(\omega) d\omega \quad (22)$$

$$\approx \int_{\text{RES}} I(v, \omega) D(\omega) d\omega + \int_{\text{NRES}} K(\omega) D(\omega) d\omega \quad (23)$$

Dabei wurde benutzt, dass $I(v, \omega)$ im Bereich "NRES" gegen Null strebt und $K(\omega)$ gegenüber $I(v, \omega)$ im Bereich "RES" vernachlässigbar ist.

Das letzte Integral lässt sich unter der Voraussetzung, dass nur der Anteil bezüglich σ_{ex} wesentliche Beiträge liefert schreiben als

$$\int_{\text{NRES}} K(\omega) D(\omega) d\omega = \int_{\text{NRES}} K(\omega) D_{\text{ex}} d\omega \quad (24)$$

$$= D_{\text{ex}} \cdot \int_{\text{NRES}} K(\omega) d\omega \quad (25)$$

$$= D_{\text{ex}} \cdot (1 - f(T)) \quad (26)$$

$$(27)$$

Insgesamt erhält man somit

$$R(v) = D_{\text{ex}} \cdot \int_{\text{RES}} I(v, \omega) D(\omega) d\omega + D_{\text{ex}} \cdot (1 - f(T)) \quad (28)$$

Für $v \rightarrow \infty$ findet keine Resonanzabsorption statt, d.h. $\sigma_{\text{RES}} = 0$ und somit $D_{\text{RES}} = \exp(-dn\sigma_{\text{RES}}) = 1$. Unter Berücksichtigung von Gleichung 11 gilt also

$$R(v = \infty) = D_{\text{ex}} \cdot f(T) + D_{\text{ex}} \cdot (1 - f(T)) = D_{\text{ex}}, \quad (29)$$

und schließlich

$$\frac{R(v)}{R(\infty)} = \frac{Z(v)}{Z(\infty)} = 1 - f(T) - \int_{\text{RES}} I(v, \omega) e^{-dn\sigma_{\text{RES}}(\omega)} d\omega. \quad (30)$$

Der Resonanzwirkungsquerschnitt σ_{RES} ist wie die Emissionslinie lorentzförmig mit einer Breite Γ , da die Absorption den zeitumgekehrten Prozeß zur Emission darstellt:

$$\sigma_{\text{RES}} = \beta f'(T) \sigma_0 \frac{\gamma^2}{\hbar^2 (\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2}, \quad \text{mit } \sigma_0 = 2\pi \left(\frac{c}{\omega_0} \right)^2 \frac{1}{1 + \alpha} \frac{2j_a + 1}{2j_g + 1}. \quad (31)$$

Dabei ist β die Isotopenhäufigkeit des absorbierenden Kerns im Absorptionsmaterial und $f'(T)$ der Debye-Waller-Faktor des Absorbers, welcher hier besagt, daß die Resonanzabsorption nur bei unverändertem Gitterzustand des Absorbers auftritt. Der maximale Wirkungsquerschnitt δ_0 im Zentrum der Resonanz enthält einen Spin-Statistikfaktor bezüglich der Spins j_a und j_g des Kerns im angeregten Zustand und im Grundzustand, sowie eine Faktor $1/(1 + \alpha)$, der den Anteil der Strahlungsübergänge an allen Kernübergängen beschreibt (siehe Abschnitt 1.6 “Konversionskoeffizient α ”). Für dünne Absorber kann die Exponentialfunktion in Gleichung 30 in $1 - dn\sigma_{\text{RES}}(\omega)$ entwickelt werden. Mit σ_{RES} aus Gleichung 31 kann die Integration explizit ausgeführt werden:

$$\frac{Z(v)}{Z(\infty)} = 1 - \frac{1}{2} n \beta d \sigma_0 f f' \frac{(\Gamma/\hbar\omega_0)^2}{(v/c)^2 + (\Gamma/\hbar\omega_0)^2} \quad (32)$$

Abbildung 4 zeigt diese relative Zählrate $\frac{Z(v)}{Z(\infty)}$ als Funktion der Geschwindigkeit v . Die Funktion stellt

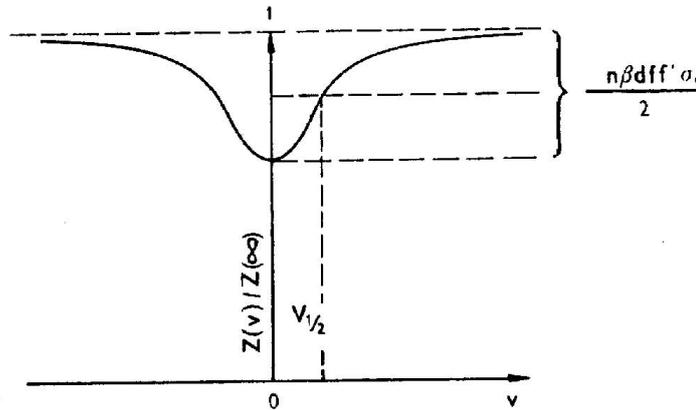


Abbildung 4: Relative Zählrate hinter einem dünnen Absorber als Funktion der Geschwindigkeit v zwischen Quelle und Absorber.

einer Lorentz-Verteilung mit einer Halbwertsbreite von $v_{1/2} = \Gamma c/\hbar\omega_0$ dar. Das entspricht einer Energiebreite auf halber Höhe von

$$\Gamma_{\text{Meß}} = 2\hbar\omega_0 \frac{v_{1/2}}{c} = 2\Gamma \quad (33)$$

wie man es für die Überlappung einer Emissions- und Absorptionslinie mit jeweils der Breite Γ erwartet.

In der Praxis verwendet man meist “dicke” Absorber, um möglichst schnell Resultate zu erhalten. Folglich kann in diesen Fällen die Exponentialfunktion nicht entwickelt werden und die Integration in Gleichung 30 erfordert umfangreiche numerische Berechnungen. Es zeigt sich, daß auch dann eine zumindest annähernd lorentzförmige Linie gemessen wird, wobei jedoch die effektive Breite durch

$$\Gamma_{\text{Meß}} = (2 + 0.27x)\Gamma, \quad \text{mit} \quad x = \beta f' dn\sigma_0 \quad (34)$$

beschrieben wird. Das heißt, dass die Linie durch die Dicke des Absorbers zusätzlich verbreitert wird.

1.6 Fe^{57} als Mössbauer-Isotop

Die Tochterkerne radioaktiver α - und β -Zerfälle sind häufig elektromagnetisch angeregt und geben ihre überschüssige Energie in Form von γ -Strahlung ab. Daher sind viele α - und β -Strahler gleichzeitig auch γ -Strahler. Eine besondere Form des schwachen Zerfalls ist der Elektron-Einfang (“Electron-Capture” EC), also der Konkurrenzprozeß zum β -Zerfall. Beim Elektron-Einfang wird statt der Emission eines Positrons e^+ durch den Atomkern ein Elektron aus der Hülle (meist der K-Schale) eingefangen. Energetische Voraussetzung für das Auftreten eines EC-Prozesses ist lediglich ein positiver Q -Wert¹ für die

¹Bezeichnet die beim radioaktiven Zerfall insgesamt freigesetzte Energie, die sich aus dem Massenunterschied der Produkte im Grundzustand vor und nach dem Zerfall ergibt.

Kernumwandlung $N(Z) \rightarrow N(Z - 1)$, während beim β -Zerfall der Wert $Q_{\beta^+} > 2m_e c^2 \approx 1 \text{ MeV}$ sein muß (m_e : Elektronenmasse). Nur für größere Q-Werte treten daher EC und β -Zerfall in Konkurrenz auf. Im Übergang ${}_{27}\text{Co}^{57} \rightarrow {}_{26}\text{Fe}^{57}$ beträgt $Q = 0.837 \text{ MeV}$, so daß hier nur EC zu erwarten ist. Praktisch alle Co^{57} -Zerfälle (99.8%) führen auf ein angeregtes Niveau des Fe^{57} Kerns bei 136 keV. Dieses Niveau zerfällt zu 11% in den Grundzustand des Fe^{57} und zu 89% in einen Zwischenzustand. Die beim anschließenden Zerfall des Zwischenzustands emittierte 14.4 keV-Strahlung ist besonders gut geeignet, um den Mössbauereffekt zu beobachten. Nur ein geringer Teil dieser Übergänge ist tatsächlich mit der Emission eines γ -Quants verbunden, in den meisten Fällen wird die Anregungsenergie auf ein Elektron der Atomhülle übertragen, welches folgend mit der entsprechenden kinetischen Energie emittiert wird. Dieser Prozeß heißt "Innere Konversion" (IK). Das Verhältnis der Zerfälle mit IK zu Zerfällen mit γ -Emission wird als "Konversionskoeffizient" α bezeichnet, der bei Fe^{57} zu $\alpha = 8.9 \pm 0.7$ bestimmt wurde. Ein Überblick der beschriebenen Zerfallsprozesse findet sich in Abbildung 5. Es sei darauf hingewiesen, daß es sich hier um eine Kobalt-Quelle (Co^{57}) handelt, die Messungen zum Mössbauereffekt allerdings am Eisen (Fe^{57}) erfolgen, welches durch den Zerfall des Kobalts mit einer Halbwertszeit von 270 Tagen entsteht. Die angeregten Eisenkerne senden drei γ -Linien bei 136.3 keV, 121.9 keV und 14.4 keV aus. Die verwendete Quelle besteht nicht aus elementarem radioaktiven Kobalt, sondern aus Kobalt-Atomen, die in eine Matrix aus Trägermaterial eindiffundiert sind. Diese Anordnung besitzt zwei experimentelle Vorteile:

- Die Eisen-Konzentration in der Quelle bleibt gering, so daß Resonanzabsorption der γ -Strahlung in der Quelle praktisch nicht auftritt.
- Man kann ein Matrix-Material wählen, das im Gegensatz zu Eisen und Kobalt nicht ferro-magnetisch ist. Dementsprechend ist die Emissionslinie nicht durch Hyperfeinstruktur aufgespalten, da in dieser Matrix kein permanentes Magnetfeld am Kernort herrscht. Diese "Einlinienquelle" liefert nur die 14.4 keV -Linie.

Die Verwendung einer solchen Einlinienquelle erleichtert die Interpretation der Meßergebnisse, da die beobachteten Linienaufspaltungen nur vom Absorber stammen können. Übliche Matrix-Materialien sind Platin, Kupfer und das hier verwendete Chrom.

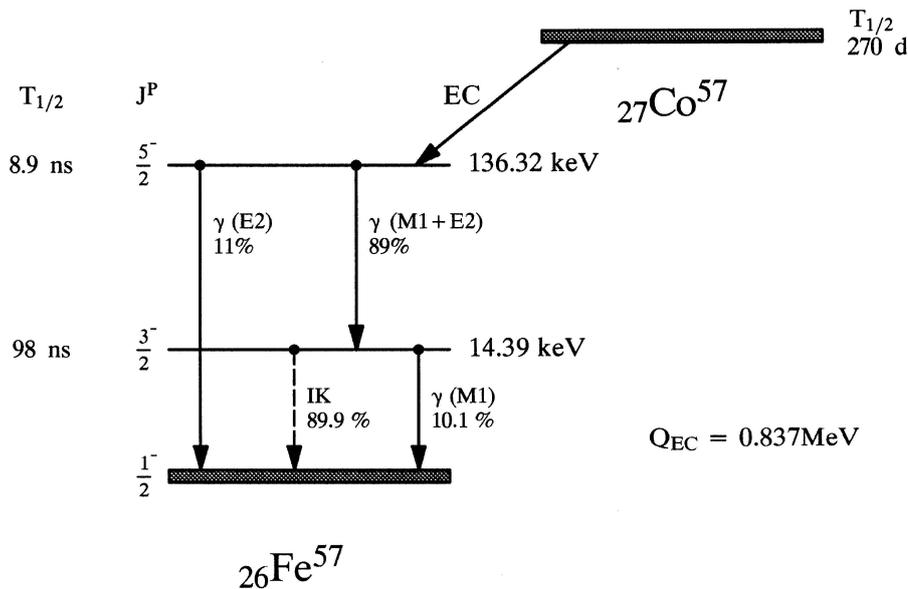


Abbildung 5: Zerfallsschema des Co^{57} mit den Energieniveaus des angeregten Tochterkerns Fe^{57} .

2 Spektroskopische Messungen

Der Mössbauereffekt erlaubt γ -Spektroskopie mit einer Auflösung, die nur durch die natürliche Linienbreite begrenzt ist. Der sensitive Bereich ist allerdings auf ein schmales Energie-Intervall um die Mössbauerlinie herum beschränkt, der durch die "Verstimmung" mittels Dopplereffekt zu erreichen ist. Als Beispiel sei die in diesem Versuch benutzte Fe-Linie bei 14.4 keV betrachtet. Mit handelsüblichen Bewegungsmechanismen für die Mössbauerspektroskopie wird eine maximale Relativgeschwindigkeit von einigen 100 mm/s erreicht. Daraus ergibt sich

$$\Delta E = E_0 \cdot \frac{v}{c} = 14.4 \text{ keV} \frac{500 \text{ mm/s}}{3 \cdot 10^{11} \text{ mm/s}} = 24 \mu\text{eV}. \quad (35)$$

Diese Form der Spektroskopie ist demnach geeignet, die unmittelbare Umgebung des eigentlichen Übergangs auf Nebenlinien oder Aufspaltungsphänomene zu untersuchen, die mit anderen spektroskopischen Methoden nicht auflösen wären. Solche Aufspaltungen können z.B. entstehen, wenn der absorbierende/emittierende Kern elektrischen oder magnetischen Feldern unterlegen ist. Im Folgenden werden diesbezüglich einige Beispiele diskutiert.

2.1 Magnetische Hyperfeinstrukturaufspaltung

Dem Kern-Drehimpuls \vec{j} (Betrag j , z-Komponente m) entspricht ein magnetisches Moment $\vec{\mu}$. Ohne äußeres Feld ist die Energie des Kerns bezüglich der magnetischen Quantenzahl m entartet. Herrscht jedoch am Kernort ein Magnetfeld \vec{H} , so wird diese Entartung aufgehoben und man beobachtet die zusätzliche Wechselwirkungsenergie

$$W = -\vec{\mu} \cdot \vec{H} \frac{m}{j}. \quad (36)$$

Dabei wurde die Richtung des \vec{H} -Feldes als Quantisierungsachse z gewählt. Ein Zustand mit Drehimpuls j spaltet in $(2j+1)$ äquidistante Energieniveaus ($m = -j, \dots, +j$) auf. Der Abstand $\mu H/j$ dieser Aufspaltung ist in der Regel für jedes Energieniveau anders. Der Übergang $|j_a m_a\rangle \rightarrow |j_g m_g\rangle$ von einem angeregten Zustand (Index a) in den Grundzustand (Index g) habe im Fall ohne Magnetfeld die Linienenergie

$$E_0 = E_a - E_g \quad (37)$$

welche nicht von m_a oder m_g abhängt. Unter Berücksichtigung eines zusätzlichen Magnetfeldes erfährt diese Gleichung eine Änderung gemäß

$$E_{ag} = \left(E_a - \mu_a H \frac{m_a}{j_a} \right) - \left(E_g - \mu_g H \frac{m_g}{j_g} \right) = E_0 - H \left(\frac{\mu_a m_a}{j_a} - \frac{\mu_g m_g}{j_g} \right), \quad (38)$$

d.h. die Übergangslinie spaltet in mehrere Linien auf. Diese Aufspaltung heißt Hyperfeinstrukturaufspaltung oder Kern-Zeemann-Effekt. Konkret ergibt sich für die 14.4 keV -Strahlung von Fe^{57} folgender Zusammenhang: Aus dem Termschema (Abbildung 6) liest man $j_a = 3/2$ und $j_g = 1/2$ ab, wobei es sich bei der emittierten Strahlung um magnetische Dipolstrahlung handelt, für welche die Auswahlregeln $\Delta m = 0, \pm 1$ lauten. Der angeregte Zustand spaltet in vier Niveaus, der Grundzustand in zwei Niveaus auf. Von den damit acht möglichen Übergängen sind sechs durch die Auswahlregeln erlaubt und in Abbildung 6 eingetragen.

Natürliches Eisen ist ferromagnetisch. Für die Magnetisierung sind die magnetischen Momente der Elektronen in den Atomhüllen verantwortlich, welche auch am Kernort ein Magnetfeld entstehen lassen, womit eine Hyperfeinstrukturaufspaltung der Kern- γ -Linien verbunden ist. Die relative Intensität der Linien kann theoretisch berechnet werden (siehe [1]). Sie hängt von den Quantenzahlen $|m_a|$ und $|m_g|$ sowie von der relativen Orientierung von Beobachtungsrichtung \vec{k} und Magnetfeldrichtung \vec{H} im Eisen ab. Verwendet man makroskopisch unmagnetisiertes Eisen, dann sind die Mikromagnetisierungen ("Weiss'sche Bezirke") statistisch verteilt und das theoretische Ergebnis ist über alle Winkel zwischen \vec{k} und \vec{H} zu mitteln. Legt man dagegen ein äußeres Magnetfeld an, werden die Weiss'schen Bezirke ausgerichtet und man erhält je nach Beobachtungsrichtung ein anderes Aufspaltungsbild. Allerdings wird mit einem äußeren Magnetfeld lediglich die Orientierung des inneren Feldes \vec{H} modelliert, indem die Spins der Hüllenelektronen eine Ausrichtung erfahren. Der Betrag der Aufspaltung bestimmt sich mit $|\vec{H}|$ und

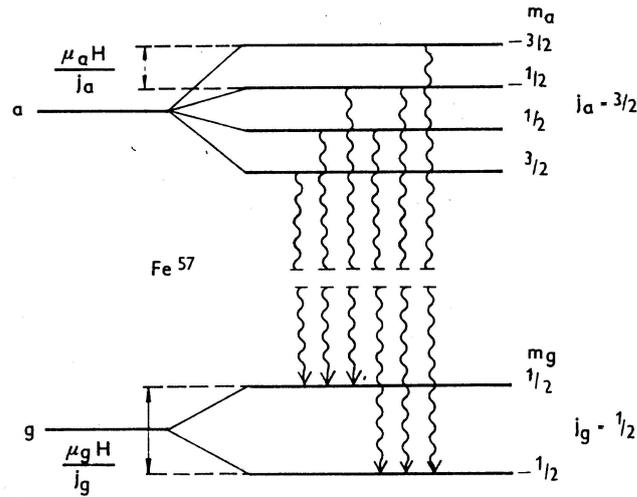


Abbildung 6: Aufspaltung des Grundzustands und des ersten angeregten Zustandes von Fe^{57} beim anlegen eines äusseren Magnetfeldes. Die erlaubten Übergänge fuer magnetische Dipolstrahlung ($\Delta m = 0, \pm 1$) sind eingezeichnet.

bleibt damit unverändert. Abbildung 7 zeigt für drei mögliche Orientierungen von \vec{k} und \vec{H} das entstehende Spektrum und die zu den Übergängen gehörenden Quantenzahlen sowie die relativen Intensitäten.

2.2 Elektrische Quadrupolaufspaltung

Auch das elektrische Quadrupolmoment eines Kerns kann zur Linienaufspaltung führen. Voraussetzung ist ein elektrischer Feldgradient am Kernort, d.h. das durch die Elektronen der Atomhülle und/oder benachbarten Atome verursachte elektrische Feld ist inhomogen. Es sei hier der Spezialfall betrachtet, daß die z-Achse durch den Kristallbau gegenüber den sonst gleichberechtigten x- und y-Achsen ausgezeichnet ist. Dann läßt sich die Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Quadrupolmoment Q und dem Feldgradienten $V_{zz} = \partial^2 V / \partial z^2$ schreiben als

$$E(j) = \frac{eQV_{zz}}{4} \frac{3m^2 - j(j+1)}{3j^2 - j(j+1)} \quad (39)$$

Fe^{57} besitzt $j_a = 3/2$ und $j_g = 1/2$. Durch Einsetzen dieser Werte in obige Gleichung sieht man, daß der Grundzustand nicht aufspaltet, der angeregte Zustand jedoch in zwei Linien ($E_j \sim m^2$) zerfällt. Es ergibt sich als Abstand der beiden Niveaus

$$E_Q = E(j = 3/2) - E(j = 1/2) = \frac{1}{2} cQV_{zz}. \quad (40)$$

Man beobachtet hier mittels Mössbauerspektroskopie ein Zweilinienspektrum mit dem Linienabstand E_Q . Aus dieser Meßgröße kann man gemäß Gleichung 40 bei bekanntem Feldgradient V_{zz} das Quadrupolmoment Q bestimmen.

Der elektrische Feldgradient am Kernort setzt sich aus einem Anteil $V_{zz}^{\text{Elektron}}(T)$ des äußeren Elektrons und einem Anteil $V_{zz}^{\text{Kristall}}(T)$ vom Kristallfeld zusammen:

$$V_{zz} = (1 - R)V_{zz}^{\text{Elektron}}(T) + (1 - \gamma)V_{zz}^{\text{Kristall}}. \quad (41)$$

Die Größen R und γ heißen Sternheimer-Faktoren. Sie berücksichtigen Ladungsverschiebungen in der gesamten Atomhülle durch die elektrischen Felder des äußeren Elektrons und des Kristalls. Beim Fe^{3+} -Ion

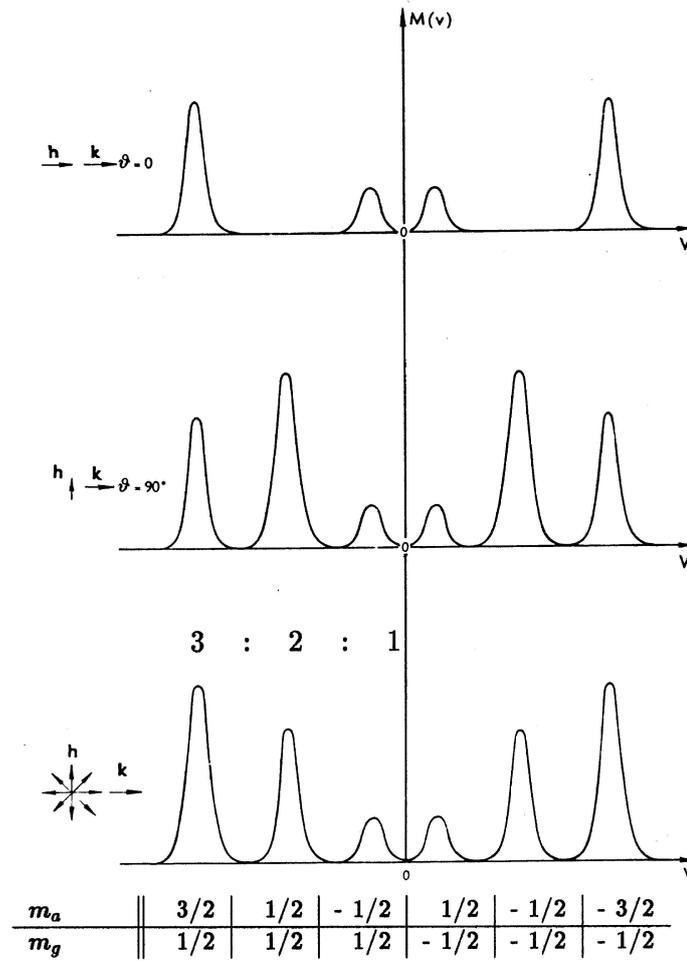


Abbildung 7: Aufspaltung des Emissionsspektrums von Fe^{57} beim Anlegen eines Magnetfeldes. Je nach Orientierung von Beobachtungsrichtung \vec{k} und Magnetfeld \vec{H} verändert sich die Intensität der Linien. Fall 1: $\vec{k} \parallel \vec{H}$, Fall 2: $\vec{k} \perp \vec{H}$, Fall 3: unpolarisiertes Magnetfeld.

kann man aus der kugelsymmetrischen Elektronenkonfiguration schließen, daß $V_{zz}^{\text{Elektron}}(T)$ verschwindet und $V_{zz}^{\text{Kristall}}(T)$ relativ klein ist, so daß man in Fe^{3+} -Verbindungen keine wesentliche Quadrupolaufspaltung erwartet. Eine temperaturabhängige Aufspaltung wird bei Fe^{2+} beobachtet, da dort ein $V_{zz}^{\text{Elektron}}(T) \gg V_{zz}^{\text{Kristall}}(T)$ auftritt.

Im Fe^{2+} wird $V_{zz}^{\text{Elektron}}(T)$ hauptsächlich durch das sechste 3d-Elektron verursacht. Aus theoretischen Rechnungen (z.B. in [1]) findet man daher für tiefe Temperaturen

$$V_{zz}(T \rightarrow 0) = \mp \frac{4}{7} \left\langle \frac{e}{r^3} \right\rangle_{3d}. \quad (42)$$

Durch Einsetzen in Gleichung 40 ergibt sich:

$$E_Q(\text{Fe}^{2+}, T \rightarrow 0) = \mp \frac{2}{7} (1 - R) e^2 Q \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{3d} \quad (43)$$

Die Größen R und $\left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{3d}$ müssen für ein konkretes Atom (auf theoretischer Basis) berechnet werden. Man findet für Fe^{2+} ([1], S.149) :

$$R = 0.42, \quad \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{3d} = 35 \cdot 10^{24} \text{ cm}^{-3}. \quad (44)$$

Hinweis: Die Gleichung 43 ist im ESU-Einheitensystem angegeben. Zur Verwendung in der Auswertung muß ins SI-System umgerechnet werden. Siehe dazu Aufgabe 3.5.

2.3 Isomerieverschiebung

Vereinfacht kann man sich den Atomkern als geladene Kugel mit Radius R und Ladung Ze vorstellen. Im Raum außerhalb dieser Kugel ist das durch sie verursachte elektrische Potential mit dem einer gleichgroßen Punktladung identisch

$$V_0(r) = \frac{Ze}{r}, \text{ für } r > R. \quad (45)$$

Im Kugelinneren findet man

$$V(r) = \frac{Ze}{R} \left(\frac{3}{2} - \frac{r^2}{2R^2} \right), \text{ für } r \leq R. \quad (46)$$

Normalerweise wird die Wechselwirkungsenergie zwischen Kern und Elektronenhülle nur mit Hilfe von Gleichung 45 berechnet. Da allerdings auch eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit für Elektronen im Kern existiert, ist dies nur eine Näherung. Nimmt man eine konstante Elektronendichte ρ im Kern an, so ist die erforderliche Korrektur zur Wechselwirkungsenergie gegeben durch

$$\delta E = - \int_0^R \rho(V(r) - V_0(r))4\pi r^2 dr = -\frac{2\pi}{5}Ze\rho R^2. \quad (47)$$

Die Ladungsdichte ρ am Kernort wird quantenmechanisch durch die Wellenfunktion $\rho = -e|\psi(0)|^2$ beschrieben. Geht nun der Kern vom angeregten Zustand in den Grundzustand über, so kann sich sein Radius von R_a nach R_g ändern. Dementsprechend erhält man unterschiedliche Korrekturen δE_a und δE_g . Die Differenz der Korrekturen wird bei einem Übergang emittiert oder absorbiert, womit sich die Energie der γ -Strahlung um diesen Betrag erhöht oder erniedrigt:

$$\delta E_a - \delta E_g = \frac{2\pi}{5}Ze^2(R_a^2 - R_g^2)|\psi(0)|^2 \quad (48)$$

$$= \frac{4\pi}{5}Ze^2R^2\frac{\delta R}{R}|\psi(0)|^2 \quad (49)$$

wobei $\delta R := R_a - R_g$ und $2R := R_a + R_g$ benutzt wurde. Sind in einem Mössbauerexperiment Quelle und Absorber aus dem gleichen Material, dann ist die Verschiebung der γ -Energie nicht meßbar. Bei unterschiedlichen Materialien ist jedoch

$$|\psi_{\text{Quelle}}(0)|^2 \neq |\psi_{\text{Absorber}}(0)|^2 \quad (50)$$

so daß man eine Verschiebung des gesamten Spektrums um

$$\delta E = \frac{4\pi}{5}Ze^2R^2\frac{\delta R}{R}(|\psi_{\text{Quelle}}(0)|^2 - |\psi_{\text{Absorber}}(0)|^2) \quad (51)$$

erhält. Dieser Effekt wird Isomerieverschiebung oder chemical shift genannt, da er durch Unterschiede in den Elektronenkonfigurationen zwischen Quelle und Absorber hervorgerufen wird. D.h. die aufgenommenen Spektren sind verschoben.

3 Der Versuchsaufbau zur Mössbauerspektroskopie

Den prinzipiellen Aufbau zur Mössbauerspektroskopie als Absorptionmessung zeigt Abbildung 8, während die Verschaltung aller Komponenten in Abbildung 9 zu sehen ist. Der Transducer bewegt die Quelle mit regelbarer Geschwindigkeit v gegen den Absorber. Mit dem Detektor wird die Zählrate in Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit aufgenommen. Gemäß Gleichung 16 bewirkt die Relativgeschwindigkeit eine Verschiebung der Emissionslinie. Durch eine Umrechnung von v nach E erhält man demnach das Absorptionsspektrum $Z(E)$ des Absorbermaterials.

Es gibt zwei parallele Aufbauten, mit leichten Unterschieden in der Bedienung die Ihnen Ihr Betreuer erläutern wird. In jedem Aufbau befindet sich eine radioaktive Quelle, deren Alter im allgemeinen um ca. 2 Jahre differiert. Überlegen Sie, welche Auswirkungen das Alter der Quelle auf das beobachtete Spektrum haben wird. Berücksichtigen Sie dabei die Halbwertszeit von Co-57.

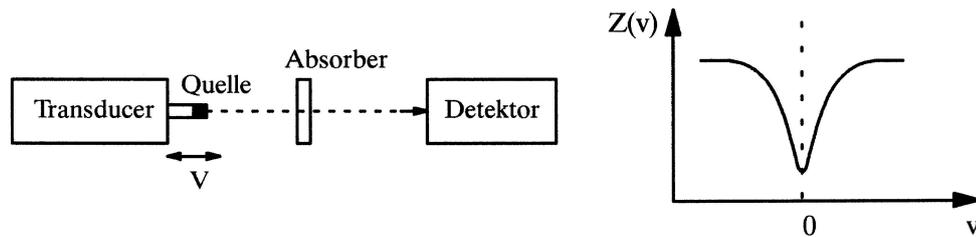


Abbildung 8: Prinzipieller Aufbau für die Mössbauer-Spektroskopie (Absorptionsmessung). Für den einfachsten Fall einer Einlinien-Quelle und -Absorber erwartet man eine geschwindigkeitsabhängige Rate $Z(v)$ wie rechts dargestellt.

3.1 γ -Spektrometer

Der Spektroskopieteil der Anlage besteht zunächst aus dem mit Xenon gefüllten Proportionalzählrohr, welches ein Beryllium-Eintrittsfenster besitzt. Die niedrig liegende K -Kante des leichten Elements gewährleistet eine gute Transparenz bis in den niederenergetischen Röntgenbereich. Direkt am Zählrohr befindet sich der Vorverstärker, der über ein kombiniertes HV/Signalkabel mit diesem verbunden ist. Im Vorverstärker, dem die Hochspannungsversorgung und seine Betriebsspannung zugeführt wird, erfolgt eine Entkoppelung des Analogsignals von der Hochspannung und anschließende Formung. Das analoge Ausgangssignal des Vorverstärkers wird auf einen kombinierten Einkanaldiskriminator/Spektroskopieverstärker geleitet, welcher zwei Ausgangssignale liefert:

- Verstärkte Analogpulse, die pulshöhenanalysiert werden. Die Schwellen des SCA werden am Rechner digital eingestellt, so daß nur die Mössbauerlinie aus dem Gesamtspektrum der Quelle selektiert wird.
- Für jeden Analogpuls, der im Amplitudenfenster des SCA liegt, wird ein Normpuls T_{sc} generiert. Dieser ist der eigentliche Zählpuls, dessen Rate bei einer bestimmten Transducer-Geschwindigkeit v den Wert $Z(v)$ liefert.

3.2 Bewegungs- und Steuer-Einheit

Die Bewegungseinheit (“Transducer”) arbeitet nach dem Lautsprecher-Prinzip. Der an Federn aufgehängte Anker, an dessen Enden die Quelle befestigt wird, wird durch einen Strom in der Antriebsspule in Bewegung gesetzt. Dadurch wird auch ein Strom in der Kontrollspule induziert. Die Transducer-Steuerung (Einschub MR 260) erhält vom digitalen Funktionsgenerator (Einschub DFG 1000) ein Analogsignal, welches die Schwingungsform des Transducers vorgibt (Soll-Bewegung). Der Strom aus der Kontrollspule ist ein Maß für die momentane Geschwindigkeit (Ist-Bewegung). Die Steuereinheit regelt den Strom in der Antriebsspule derart, daß der Unterschied zwischen Soll- und Ist-Bewegung minimiert wird. Zusätzlich kann an der Steuereinheit die Amplitude des Antriebsstroms und damit die mechanische Schwingungsamplitude eingestellt werden. Prinzipiell könnte man der Steuereinheit jede beliebige periodische Steuererspannung, wie z.B. Dreieck, Rechteck, Sägezahn, etc., vorgeben. In der Praxis ist es günstig, eine Sinusschwingung mit einer Frequenz zu wählen, die näherungsweise der mechanischen Eigenfrequenz des Transducers entspricht. Man betreibt dann das schwingungsfähige System praktisch als freien Oszillator und gleicht durch den Antrieb lediglich die Dämpfung der Schwingung durch Reibungsverluste aus.

$$x(t) = A \cdot \sin(\omega t), \quad (52)$$

mit einem Geschwindigkeitsverlauf

$$v(t) = \dot{x}(t) = A\omega \cos(\omega t) =: v_{\max} \cdot \cos(\omega t). \quad (53)$$

Daraus ergibt sich die Beziehung

$$A = \frac{v_{\max}}{\omega} \quad (54)$$

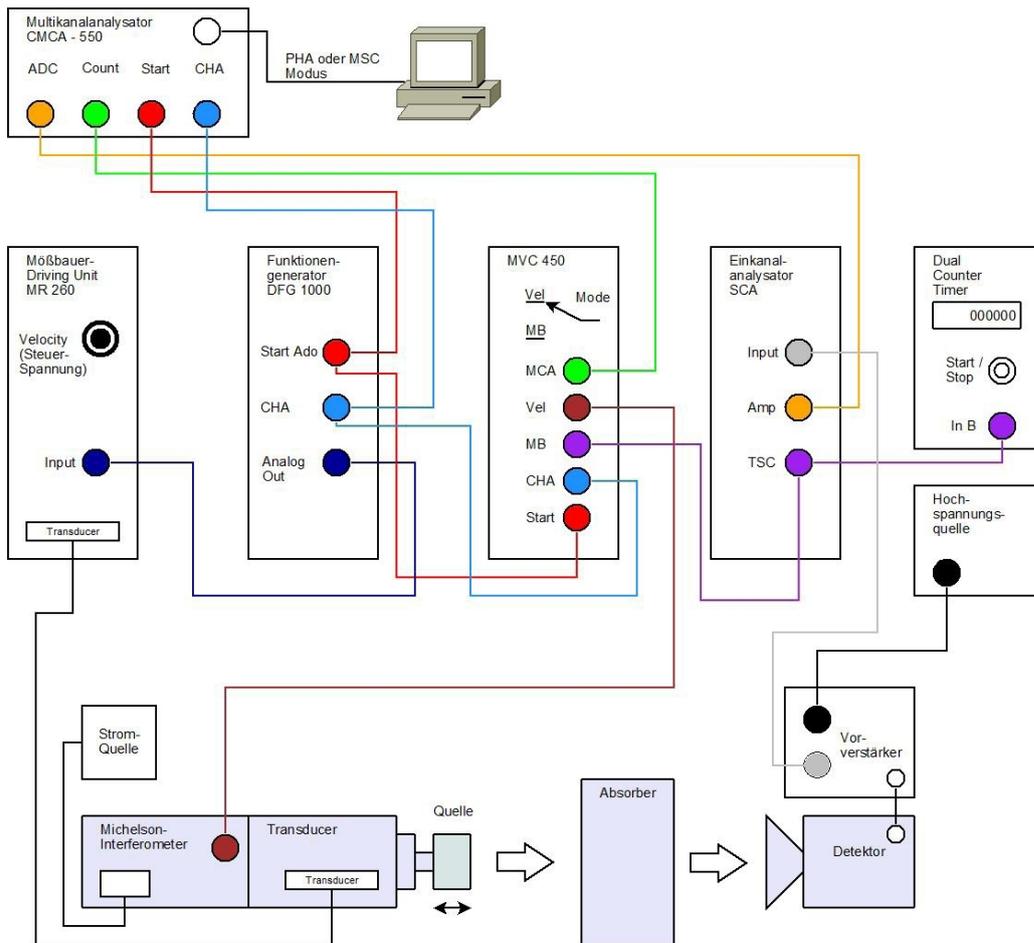


Abbildung 9: Übersicht über die Verschaltung aller Komponenten [6].

zwischen Schwingungshub A , der Frequenz ω und der Maximalgeschwindigkeit v_{\max} . In jedem Transducerhub wird demnach das gesamte Geschwindigkeitsspektrum zwischen $-v_{\max}$ und $+v_{\max}$ durchlaufen. Mit der Einstellung von v_{\max} legt man an der Steuereinheit den Geschwindigkeitsbereich - und damit den Energiebereich - der Messung fest. Da die Frequenz am Funktionsgenerator vorgegeben wird, bestimmt sich A aus Gleichung 54. Ein typischer Meßbereich liegt bei $v_{\max} = 10 \text{ mm/s}$. Die mechanische Eigenfrequenz des MA-260 liegt bei $\omega = 25 \text{ Hz}$, woraus sich eine Amplitude von $63 \mu\text{m}$ ergibt, d.h. die Schwingung des Transducers ist eine schwach sichtbare Vibration. Für die Aufnahme eines Absorptionsspektrums wäre diese Einstellung gut geeignet, jedoch für den Betrieb des Laserkalibrators durch den extrem kurzen Hub ungeeignet. Da der Geschwindigkeitsbereich durch den zu vermessenden physikalischen Effekt vorgegeben ist, bleibt zur Hubvergrößerung nur die Reduktion der Frequenz: Hier haben sich Frequenzen um $\omega = 1 \text{ Hz}$ bewährt.

3.3 Laser-Kalibrator

Der Laserkalibrator dient zur Messung der Momentangeschwindigkeit des Transducers. Er besteht aus einem Michelson-Interferometer und einer elektronischen Steuer- und Auslese-Einheit. Das Interferometer ist fest mit dem Transducer verbunden. Der verwendete He-Ne-Laser besitzt eine Wellenlänge von $\lambda = 632.8 \text{ nm}$. Die Teilstrahlen 1 und 2 interferieren zum Strahl 3, dessen Intensität von der Photodiode gemessen wird. Anfänglich sei der Gangunterschied g der beiden Teilstrahlen 1 und 2 identisch Null, die Intensität an der Photodiode also maximal. Bewegt sich der Transducer und damit das Prisma 2 um eine Strecke Δx , so entsteht ein Gangunterschied $g = 2\Delta x$. Insbesondere verschwindet für $g = x/2$ die Intensität des Interferenzstrahls 3 durch destruktive Interferenz. Man erhält für eine Verschiebung des

Transducers um Δx eine Zahl n von Hell/Dunkel-Wechseln an der Photodiode:

$$n = \frac{g}{\lambda} = \frac{2\Delta x}{\lambda} \quad (55)$$

Nimmt man in einem hinreichend kleine Zeitintervall Δt die Transducergeschwindigkeit v als konstant an, so ergibt sich wegen $v = dx/dt$

$$n = \frac{2\Delta t}{\lambda} v \quad \leftrightarrow \quad v = \frac{n}{2t/\lambda} = \frac{n}{3160.56 \cdot t} [\text{mm/s}]. \quad (56)$$

und mit obigem Wert für λ .

Zerlegt man demnach die Schwingungsperiode T des Transducers in hinreichend kleine Zeitabschnitte t_i und mißt für diese jeweils die Anzahl n der von der Photodiode registrierten Hell/Dunkel-Wechsel, dann ist n_i nach Gleichung 56 ein Maß für die Momentangeschwindigkeit v in der Zeit t_i .

3.4 Vielkanalanalysator: Spektrenaufnahme

Der Vielkanalanalysator CMCA 550 kombiniert die Signale aus dem Gammaspektroskop und der Bewegungseinheit zu Spektren. Prinzipiell handelt es sich hier um einen Pulszähler mit 4096 Kanälen, der in zwei Moden betrieben werden kann:

PHA Pulshöhenanalyse-Betriebsart: Über den Datenbus "ADC" wird die Adresse des Kanals eingelesen, dessen Inhalt um Eins erhöht werden soll. Wenn diese Adresse dem digitalisierten Amplitudenwert von Analogpulsen entspricht (Ausgang eines ADC), erhält man durch Registrieren vieler Amplituden die Pulshöhenverteilung dieser Analogpulse als Histogramm in den Zählerkanälen. Der CMCA 2000 enthält im Gegensatz zu vielen handelsüblichen VKA's keinen implementierten ADC sondern lediglich eine Schnittstelle "ADC" zur externen Inbetriebnahme eines solchen.

MCS Multichannel-Scaler-Betriebsart: Alle im Eingang "COUNT" anliegenden Pulse werden im momentanen Zählkanal registriert, bis am Eingang "CHA" ein Puls nachgewiesen wird. Folgend wird auf den nächsten Zählkanal umgeschaltet. Ein Signal am Eingang "START" initialisiert den VKA auf Zählkanal Null.

Bei der Aufnahme des Pulshöhenspektrums der Mössbauerquelle wird der PHA-Mode benutzt. Im MCS-Mode werden dann sowohl die Absorptionsspektren als auch die Spektren zur Geschwindigkeitskalibration aufgenommen. In beiden Fällen wird zur Kanaladressierung (START und CHA) das Signal CHA bzw. START/ADO des Funktionsgenerators benutzt. Dieses Signal enthält die Phaseninformation der Transducerbewegung. Bei der Geschwindigkeitskalibration dienen die Pulse der Photodiode im Laserinterferometer als Zählpulse. Die Anzahl dieser Pulse pro Zeiteinheit (vergl. Abschnitt 3.3) ist proportional zur Momentangeschwindigkeit des Transducers. Man erhält ein Spektrum, in dem der Kanalinhalt ein Maß für die diesem Kanal (= Phasenwert) entsprechende Transducergeschwindigkeit ist. Danach ist eine Geschwindigkeitseichung der Spektren möglich. Bei der eigentlichen Aufnahme von Absorptionsspektren dient das Signal "Tsc" des SCA als Zählpuls. Man nimmt also auf, wieviele Pulse im Mössbauerpeak bei der dem Kanal entsprechenden Phase der Transducerbewegung registriert wurden. Wird die Kanalnummer nach der oben beschriebenen Kalibration in Geschwindigkeit umgerechnet, so erhält man das gesuchte Absorptionsspektrum $Z(v)$.

3.5 Auslese und Auswertung mittels PC

Die mit dem Vielkanalanalysator CMCA 550 aufgenommenen Spektren werden mittels eines PCs weiterverarbeitet. Auch die Steuerung des Analysators kann annähernd vollständig über den PC vorgenommen werden.

4 Aufgaben

Die folgenden Aufgaben sollten vor dem Praktikumsversuch gelöst werden, da die numerischen Ergebnisse während der Durchführung zur Einstellung der Meßbereiche und sofortigen Überprüfung der Resultate benötigt werden.

Das γ -Spektrum der Co^{57} -Quelle

- Das γ -Spektrum der Quelle enthält außer der 14.4 keV-Mössbauerlinie zwei weitere Linien bei 136.3 keV und 121.9 keV. Wie sind die relativen Intensitäten dieser Linien bezogen auf die Mössbauerlinie?
- Für diese beiden Linien sind im gemessenen Spektrum (Versuchsteil 5.2) außer dem Photopeak auch Compton-Kante und Rückstoßpeak zu erwarten. Bei welchen Energien liegen diese?
- Welche weiteren Strukturen können im gemessenen Pulshöhenspektrum auftreten (z.B. Effekte, die durch weiteres Material am/im Strahlengang verursacht werden)?

Die Mössbauerlinie

- Wie groß ist die natürliche Linienbreite der 14.4 keV-Linie?
- Welche Rückstoßverschiebung würde man bei einem freien Fe^{57} -Kern bei der Emission dieser Linie beobachten?
- Um eine grobe Abschätzung der Dopplerverbreiterung dieser Linie zu bekommen, berechne man diese bei einer Temperatur von 300 K. (Die dazu gehörende - wahrscheinlichste - thermische Geschwindigkeit folgt aus der Maxwell-Verteilung $v = \sqrt{2kT/M}$.)

Effektive Linienbreite

Der zur Aufnahme des Einlinienspektrums (Versuchsteil 5.4.1) benutzte Absorber besteht aus rostfreiem, nicht-magnetischem Stahl. Er besitzt eine atomare Dichte von $n = 8.4 \cdot 10^{22} \text{cm}^{-3}$, einen Isotopenanteil von $\beta = 2.2\%$ Fe^{57} und eine Dicke $d = 25 \mu\text{m}$. Er ist daher im Sinne von Abschnitt 1.5.2 als "dicker Absorber" anzusehen. Sein Debye-Waller-Faktor ist $f' = 0.85$.

- Wie groß ist die tatsächlich zu erwartende Linienbreite $\Gamma_{\text{Meß}}$?
- Welchem Geschwindigkeitsintervall entspricht diese Breite der Messung? Welcher Meßbereich (Maximalgeschwindigkeit v_{max}) ist also für die Messung der natürlichen Linienbreite (Versuchsteil 5.4.1) geeignet?

Magnetische Hyperfeinstrukturaufspaltung

- Wie groß ist die maximale Linienaufspaltung, welche man durch magnetische Hyperfeinstruktur (Versuchsteil 5.4.2) erwartet? Für diese Abschätzung benutze man

$$\mu_g = -0.0903\mu_K, \quad (57)$$

$$\mu_a = 0.15\mu_K, \quad (58)$$

$$H \approx 30T, \quad (59)$$

$$\mu_K = 3.15 \cdot 10^{-8} eVT^{-1} \quad (\text{Kernmagneton}). \quad (60)$$

- Welchem Geschwindigkeitsintervall entspricht die maximale Aufspaltung? Welchen Meßbereich sollte man demnach in Versuchsteil 5.4.2 wählen?

Elektrische Quadrupolaufspaltung

Die Meßgröße in Versuchsteil 2.2 ist die Linienaufspaltung E_Q . Nach Gleichung 43 kann daraus das Quadrupolmoment Q bestimmt werden. Das für die Berechnung in Gleichung 43 benutzte theoretische Ergebnis ist allerdings nicht in SI sondern im elektrostatischen Einheitensystem ESU angegeben worden. Der Unterschied wird im Coulomb-Gesetz des elektrischen Potentials einer Ladung q deutlich:

$$\Phi = k \frac{q}{r}. \quad (61)$$

Im ESU definiert man $k = 1$, wohingegen im SI der Strom eine zusätzliche Basisgröße darstellt und $k = 1/4\pi\epsilon_0$ gilt.

- Der Literaturwert für das Quadrupolmoment ist $Q = 0.18 \cdot 10^{-24} \text{cm}^2$ [1]. Welchen Linienabstand E_Q erwartet man demzufolge?
- Welchem Geschwindigkeitsintervall entspricht dieser Linienabstand? Welchen Meßbereich sollte man im Versuchsteil 2.2 wählen?

5 Versuchsdurchführung

5.1 Verkabelung und Inbetriebnahme

Die Verkabelung ist für alle Teile des Versuchs geeignet und schon vollständig angebracht. Vor dem Einschalten der Stromversorgung am NIM-Crate muß sichergestellt sein, daß die Hochspannungsversorgung für das Zählrohr nicht eingeschaltet ist. Die Schalter an der Hochspannungseinheit müssen in die Stellungen “OFF” und “0 V” gebracht werden. Nach dem Einschalten des Crates ist die Einstellung der Hochspannung schrittweise durchzuführen:

- Einstellen des Spannungswertes. Das Gerät liefert eine Maximalspannung von 6 kV, wobei das Zählrohr eine Spannung von 2.1 kV verträgt. Betriebsspannungen zwischen 1950 und 2000 Volt haben sich bewährt.
- Aktivieren der Hochspannungskontrolle durch den “ON” Schalter.
- Spannung einschalten, wobei diese von 0 V mit einer Steigung von 100 V/s auf den eingestellten Maximalwert wandert.

Beim Ausschalten muß die umgekehrte Reihenfolge eingehalten werden. Erst nachdem die Spannung auf annähernd 0 V gefallen ist, sollte die Kontrolle “OFF” geschaltet werden. Die weiteren Bedienungselemente für Transducerbewegung und Spektroskopie sind selbsterklärend beschriftet. Die Frequenzeinstellung am DFG-1000 erfolgt in Hz, die Geschwindigkeitseinstellung an der Transducersteuerung in relativen Einheiten, wobei die tatsächliche Geschwindigkeit aus der Kalibration folgt. Sollte nach dem Einschalten ein Ton vom Transducer zu hören sein, muß der Regelkreis in der Transducersteuerung neu justiert werden. Auch am Laserkalibrator ist gelegentlich eine neue Justierung der Optik erforderlich (der Sachlage folgend, daß keine vernünftigen Kalibrationsspektren gemessen werden können).

5.2 Analyse des Quellspektrums

Zur Einstellung des SCA muß die Mössbauerlinie im Spektrum der Quelle identifiziert werden. Dazu werden zwei Pulshöhenspektren (PHA-Mode des CMCA-550) aufgenommen:

- Mit Strahlabsorber und eingeschaltetem Transducer. Theoretisch verschwindet die Resonanzabsorption für $v \rightarrow \infty$, praktisch erscheint eine Geschwindigkeit von einigen mm/s ausreichend. Die Mössbauerlinie ist folgend im Spektrum enthalten.
- Mit Strahlabsorber und ausgeschaltetem Transducer. Das entspricht $v = 0$ und somit maximaler Resonanzabsorption. Gegenüber dem ersten Spektrum ist die Mössbauerlinie geschwächt.

Das erste Spektrum zeigt das gesamte γ -Spektrum der Quelle und dient zur Diskussion dieser Quelle (\rightarrow Auswertung). Aus der Differenz beider Spektren kann die exakte Position der Mössbauerlinie ermittelt werden. Um den Untergrund von Photonen jenseits der Mössbauerlinie zu unterdrücken, werden die Schwellen am Rechner so eingestellt, dass nur noch die Mössbauerlinie zu sehen ist. Jede Veränderung der Einstellungen am γ -Spektrometer (z.B. HV, Schwellen, Verstärkung, ...) hätte zur Folge, daß der Versuchsteil wiederholt werden müßte.

5.3 Messung des Extinktionswirkungsquerschnitts

Nach Gleichung 29 kann man D_{ex} und damit den Extinktionswirkungsquerschnitt σ_{ex} durch Messung von $R(\infty)$ bestimmen. Dazu benötigt man die Zählraten (siehe Gleichung 30) $Z(\infty)$ und $Z(\text{ohne Absorber})$. Mit einem Digitalzähler sollen diese Zählraten aufgenommen werden. Es ist auf hinreichende Statistik zu achten. Für $v = \infty$ reicht wiederum eine Geschwindigkeit von wenigen mm/s aus. Außerdem sollte die Zählrate ohne Quelle gemessen werden, um auf eine eventuelle Nullrate korrigieren zu können.

5.4 Aufnahme der Absorptionsspektren

Für diese Aufnahmen wird der Vielkanalanalysator CMCA-550 in den MCS(Window)-Mode geschaltet. Zu jedem Spektrum werden zunächst kurze Probemessungen gemacht, um die korrekte Geschwindigkeitseinstellung zu finden. Mit dieser Einstellung wird ein Kalibrationsspektrum aufgezeichnet: Der Schalter "MODE" an der Kalibratoreinheit MVC-450 wird in die Stellung "VEL" gebracht, wodurch am Vielkanalanalysator CMCA-550 statt der Zählrohpulse (Stellung "MB" die Pulse der Photodiode im Laserinterferometer gezählt werden, welche nach Gleichung 56 ein Maß für die Geschwindigkeiten sind. In den Kanälen 0 und 1023 wird statt der Photodioden-Pulse eine 1 MHz-Signal aufgenommen, so daß hier die benötigte Zeit t in Einheiten 10^6 s gemessen werden kann. Die Abweichung der ansonst gleichen Einträge der Kanäle ist ein Maß für die Frequenzstabilität der Anlage. Für die folgenden Aufnahmen der Absorptionsspektren ist jeweils in den "MB" Mode zurückzuschalten.

5.4.1 Aufnahme des Einlinienspektrums

Mit einem Strahlabsorber wird ein Absorptionsspektrum in einem akzeptablen Geschwindigkeitsbereich und einer genügend hohen Statistik aufgenommen, so daß Form und Breite der Linie gut zu erkennen sind.

5.4.2 Messung der magnetischen Hyperfeinstruktur

Mit einem Absorber aus natürlichem Eisen wird ein Absorptionsspektrum in einer Kanalaufösung aufgezeichnet, durch welche die Linienlage und Linienbreite deutlich sichtbar gemacht werden können.

5.4.3 Messung der elektrischen Quadrupolaufspaltung

Mit einem Absorber aus $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ wird ein Spektrum aufgenommen. Durch die Eigenschaften des FeSO_4 (Fe^{2+} -Verbindung) erwartet man nach Abschnitt 2.2 eine erkennbare Quadrupolaufspaltung. Entscheidend für die Bestimmung des Quadrupolmoments ist der Linienabstand E_Q , wohingegen die Linienform und die Linienbreite nicht zur Auswertung beitragen sollten. (Die Einstellung aus der vorangegangenen Messung des Sechslinienspektrums können übernommen werden, wodurch auf eine erneute Kalibrationsmessung verzichtet werden kann.)

6 Hinweise zur Auswertung

- Von jedem Spektrum, das in die Auswertung eingeht, ist ein Ausdruck anzufertigen und dem Protokoll beizulegen!
- Alle Messgroessen sind mit Fehler und der Methode zur Fehlerbestimmung (Gauss'sche Fehlerfortpflanzung (Formel weglassen!), Abschätzung, Fehler aus Fit) anzugeben.
- Auf die physikalisch sinnvolle Angabe von Nachkomma-Stellen ist zu achten.
- Theoretische Grundlagen sollten nur soweit angeführt werden, wie sie zum Verständnis der jeweiligen Rechnung notwendig erscheinen. Alle theoretischen Grundlagen der Anleitung koennen vorausgesetzt werden und muessen nicht in der Auswertung dargelegt werden.

Beschreibung/ Auswertung

- Diskussion des aufgenommenen Quellspektrums mit dem entsprechenden Aufbau: Möglichst viele der sichtbaren Strukturen durch die zugrundeliegenden Prozesse erklären. Eine grobe lineare Kanal-Energie-Eichung anhand einiger eindeutig identifizierbarer Peaks.
- Berechnung des Extinktionswirkungsquerschnitts mit Fehlerbestimmung aus den gemessenen Zählraten. Kalibration in Geschwindigkeiten und Energien für alle Absorptionsspektren mit Hilfe der Kalibrationsdaten. (Numerische Bestimmungen !)
- Bestimmung der natürlichen Linienbreite Γ und der Lebensdauer τ aus dem Einlinienspektrum.

- Bestimmung des Magnetfeldes H am Kernort und des magnetischen Moments μ_a des angeregten Zustands aus den Linienabständen im Sechslinienspektrum. Das magnetische Moment des Grundzustands μ_g kann aus Aufgaben übernommen werden.
- Bestimmung der relativen Linienintensitäten im Sechslinienspektrum inklusive Fehler und einem Vergleich mit der theoretischen Vorhersage.
- Bestimmung des Kernquadrupolmoments Q aus dem gemessenen Linienabstand im Zweilinienspektrum und Vergleich mit dem Literaturwert.
- Bestimmung der Isomerieverschiebung in allen gemessenen Spektren.

Literatur

- [1] H. Wegener, Der Mössbauereffekt, BI-Hochschulbücher, Bibliographisches Institut, Mannheim 1965.
- [2] H. Frauenfelder, The Mössbauer effect, A Review - with a collection of Reprints, W.A. Benjamin Inc., New York 1962.
- [3] L. May (Hrsg.), An Introduction to Mössbauer Spectroscopy, Plenum Press, New York 1971.
- [4] H. Haken, H.C. Wolf, Atom- und Quantenphysik, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg/New York 1980.
- [5] S. Margulies, J.R. Ehrmann, Transmission and Line Broadening of Resonance Radiation Incident on a Resonance Absorber, NIM 12 (1961), S. 131-137.
- [6] F. Haas, G. Antonopoulos, Versuchsauswertung: Der Mössbauereffekt, 2008.