
Mößbauereffekt an ^{57}Fe

Teilnehmer: Kirill Boguslavski , Oleg Nikiforov

Betreuer: Scheikh Obeid

Datum: 30.05.2011



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Wir versichern hiermit, dass wir den vorliegenden Bericht eigenständig und ohne Hilfe Dritter ausgearbeitet haben. Alle Zitate sind als solche gekennzeichnet. Alle Grafiken sind von uns erstellt worden.

Inhaltsverzeichnis

1	Physikalische Grundlagen	3
1.1	Natürliche Linienbreite	3
1.2	Mößbauereffekt	3
1.3	Debye-waller Faktor	3
1.4	Experimentelle Beobachtung des Mössbauer Effekts	3
2	Durchführung	5
2.1	Quelle	5
2.2	Messaufbau und Messung	5
3	Auswertung	6
3.1	Impulshöhenspektrum	6
3.2	Eisenmetall und Eichung	6
3.3	Edelstahl und Debye-Waller-Faktor	6
3.4	Borazit	10
3.5	Lebensdauer des angeregten Zustandes von ^{57}Fe	10

1 Physikalische Grundlagen

Die auf dem Mößbauereffekt basierende Mößbauerspektroskopie bietet eine Möglichkeit, um Energieänderungen in Energiespektren ziemlich genau zu messen. Damit ist sie eine bedeutende Methode in der Physik und in der Chemie. Für seine Entdeckung erhielt Rudolph Mößbauer 1961 den Nobelpreis für Physik.

1.1 Natürliche Linienbreite

Aus der Heisenbergschen Unschärferelation folgt, dass eine natürliche Linienbreite bei γ -Linien durch $\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}$ gegeben ist (τ - mittlere Lebensdauer des angeregten Zustands). Bei 14,4keV-Übergang von ^{57}Fe beträgt sie $\Gamma = 4,7 \cdot 10^{-9} \text{eV}$. Die relative Linienbreite ist mit $\Gamma/E_\gamma \approx 3 \cdot 10^{-13}$ sehr klein.

1.2 Mößbauereffekt

Ein angeregter Atomkern kehrt unter Aussendung eines γ -Quants in den ursprünglichen Zustand zurück. Die Energie des Quants ist geringer, als die Niveauübergangsenergie, da aus Impulserhaltungsgründen der Kern einen "Rückstoß" E_R erfährt. Bei der Absorption muss die Energie des Quants E_γ dementsprechend höher sein, als die Niveauübergangsenergie E_0 .

Mößbauereffekt wird auch als rückstoßfreie Absorption bezeichnet. Dabei handelt es sich um einen Effekt, bei dem die Energie des absorbierten γ -Quants vollständig zur Anregung des Atomkerns verwendet wird und der Beitrag zur kinetischen Energie des Kerns verschwindet. Die Impulserhaltung gilt allerdings weiterhin.

$$E_\gamma = E_0 - E_R \quad E_R = \frac{1}{2} m v^2 \quad p_n = -p_\gamma = -\frac{E_\gamma}{c} \Rightarrow E_R = \frac{p_n^2}{2m} \approx \frac{E_\gamma^2}{2mc^2} = 1,95 \cdot 10^{-3} \text{ eV für } ^{57}\text{Fe} \quad (1.1)$$

Wobei die letzte Näherung aufgrund der großen Kernmasse und der kleinen Rückstoßenergie gilt. Bei Berücksichtigung der Termischen Bewegung ergibt sich:

$$E_R = \frac{E_\gamma^2}{2mc^2} - E_\gamma \frac{v_t}{c} \quad (1.2)$$

1.3 Debye-waller Faktor

Die Wechselwirkung der Atome in einem Kristall kann nach Debye'schem Modell beschrieben werden, welches besagt, dass die Frequenzen der Atomoszillationen nicht stetig (nicht diskret) bis zu einer Maximalfrequenz ω_{max} auftreten. Dann lässt sich mit Hilfe der Debye-Temperatur $\theta = \frac{\hbar\omega_{max}}{k_B}$ der Debye-Waller Faktor definieren:

$$f = e^{-\frac{E_n}{k_B\theta} \left(\frac{3}{2} + \frac{\pi^2 T^2}{\theta^2} \right)} \quad (1.3)$$

mit T-absolute Temperatur. Anders als in der Festkörperphysik beschreibt der Debye-Waller Faktor den Anteil der rückstoßfrei absorbierten Atome. Bei der Debye-Temperatur verschwindet der Debye-Waller Faktor.

1.4 Experimentelle Beobachtung des Mössbauer Effekts

Das Wesentliche in dem Versuch zum Nachweis des Mößbauereffekts ist dass die Quelle mit einer Geschwindigkeit v sich zum Absorber hin bewegt. Dann kann erreicht werden, dass E_R in Gleichung 1.2 verschwindet und eine rückstoßfreie Absorption beobachtbar ist. Tatsächlich beobachtet man nicht nur einen Absorptionslinie, sondern mehrere (Abb. 1.1), die durch folgende Effekte entstehen:

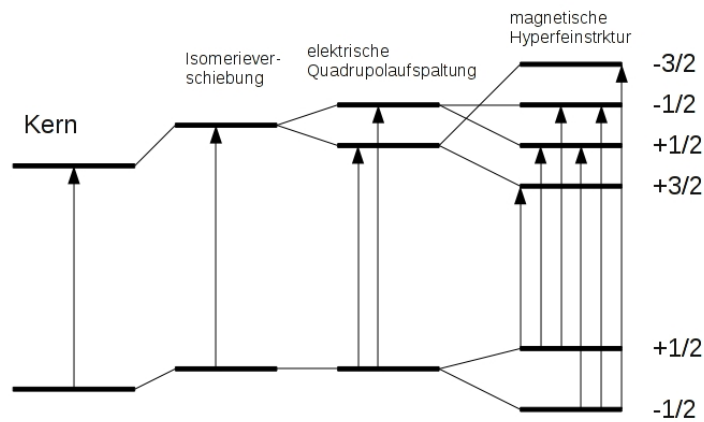


Abbildung 1.1: Die Niveaufspaltung und die beobachteten Übergänge bei rückstoßfreien Absorption von ^{57}Fe

- Bei **Isomerieverschiebung** handelt es sich um eine Störung des Kernpotentials durch die Hüllenelektronen, die in verschiedenen chemischen Verbindungen verschieden verteilt werden können. Der Beitrag dieser Art der Verschiebung ist in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite. Isomerieverschiebung verwendet man zur Untersuchung der chemischen Bindungen.
- **elektrische Quadrupolwechselwirkung** wird durch ein nichtverschwindendes elektrisches Quadrupolfeld eines deformierten Kerns hervorgerufen. Bei Quadrupolaufspaltung wird ein Niveau in $\frac{2I+1}{2}$ Linien aufgespalten, wobei I der Kernspin ist. Die Größe dieser Verschiebung bzw. Aufspaltung lässt Rückschlüsse auf das Quadrupolfeld bzw. die Form des Kerns schliessen.
- **Magnetische Hyperfeinstruktur** ist eine Aufhebung der Entartung der Niveaus für verschiedene Drehimpulse des Kerns in Anwesenheit eines äußeren Magnetfeldes (Zeemann Effekt). In diesem Fall entstehen $2I + 1$ mögliche Niveauübergänge, die in Abb. 1.1 beispielhaft für ^{57}Fe eingezeichnet sind.

2 Durchführung

2.1 Quelle

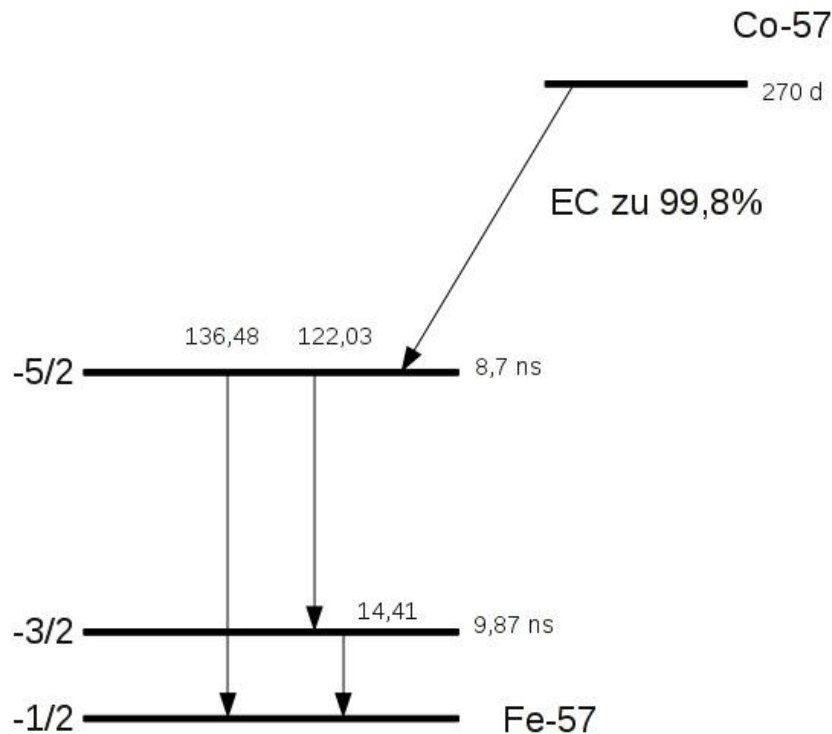


Abbildung 2.1: Zerfallschema von ^{57}Co

Als Quelle der γ -Strahlen diente eine Probe von ^{57}Co , welches zu 99,8% durch Elektroneneinfang in angeregtes ^{57}Fe zerfällt. Das Zerfallschema ist auf der Abb.2.1 zu finden.

2.2 Messaufbau und Messung

Zur Messung wurde ein Proportionalitätszählrohr verwendet, auf welches die Quelle bewegt wurde. Die Bewegung wurde durch ein Elektromotor ausgeführt und stellte eine lineare Bewegung dar, zur Quelle hin und wieder von der Quelle weg.

Es wurde die ^{57}Co - ^{57}Fe -Probe eingesetzt und eine Schwingung von 8 Hz eingestellt. Am Detektor legte man eine Spannung von 2000 V an und das Eingangssignal zur Geschwindigkeitssteuerung wurde am Oszilloskop betrachtet. Man sah eine Dreiecksspannung, deren Amplitude zu 6,88 Vpp (Volt von Peak zu Peak) gemessen wurde. Die Signale des Zählrohrs nach der Verstärkung wurden ebenfalls am Oszilloskop gesehen und die Amplitude wurde zu 140 mV gemessen.

Um unsere Messapparatur auf der Resonanzenergie von 14,4 keV des Eisens einzustellen, nahmen wir ein Impulshöhenspektrum mit dem Edelstahlabsorber auf (Messzeit 100 s) und setzten mit Hilfe des Einkanaldiskriminators ein Fenster auf den zweiten Peak, den wir zuvor als die gesuchte 14,4 keV Linie identifiziert hatten (der erste Peak entspricht der 6,8 keV K_{α} -Linie, die durch den Röntgenübergang des Kobalts beim Elektroneneinfang entsteht).

Dann nahmen wir Mößbauer-Spektren von Eisenmetall ($t_{\text{mess}} = 4210$ s), von Edelstahl ($t_{\text{mess}} = 3816$ s) und von Borazit ($t_{\text{mess}} = 171339$ s) auf.

3 Auswertung

Die Anpassung der erhaltenen Kurven machten wir mit einer Lorentz-Kurve

$$lor(x) = a \frac{b/2}{(x - x_0)^2 + (b/2)^2} + c \quad (3.1)$$

bzw. mit einer Summe von solchen Kurven. Dann heißen unsere Parameter a_i , b_i und $x_{0,i}$ und es gibt immer nur einen Offset c pro aufgenommenem Spektrum. Wir passten unsere Spektren in Abhängigkeit von der Kanalnummer an, damit Fehler aus der Geschwindigkeitseichung nicht schon beim Fit eine Rolle spielen, sondern mit Hilfe der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung zum Messfehler beitragen.

Die physikalischen Bedeutungen der Parameter sind wie folgt: b ist die Halbwertsbreite der Kurve, x_0 der Mittelwert (das Minimum im Fall von Resonanz), c ist die Anzahl der detektierten Teilchen ohne Absorption und die Tiefe $T_i = c - lor(x_0) = \left| \frac{2a}{b} \right|$ ergibt sich aus a und b . Außerdem ist die Fläche unter einer Lorentz-Kurve $A = a\pi$.

3.1 Impulshöhenspektrum

Im aufgenommenen Impulshöhenspektrum (s. Abb. 3.1) lassen sich zwei Maxima deutlich erkennen. Wie in der Durchführung bereits erwähnt, wurden der erste Peak mit der K_α -Linie von ^{57}Co und der zweite mit der für unseren Versuch relevanten 14,4 keV - Linie identifiziert.

Man erkennt, dass ein Untergrund existiert, auf dem die Peaks liegen. Da unser Einkanaldiskriminator also auch die Untergrundcounts durchlässt, muss das Verhältnis ε_i der Linienfläche zur Summe aller durchgelassenen Counts bestimmt werden, um später den Debye-Waller-Faktor bestimmen zu können. Wir bestimmten die Linienfläche zu $A = 17480 \pm 1010$ Counts (mal Kanäle) und den Offset $c = 234 \pm 17$ Counts. Allerdings waren wir uns nicht ganz sicher, wo wir die Grenzen des Fensters legten, sodass wir mit einem relativ großen Fehler von 20 % die Fensterbreite $K = 24 \pm 5$ Kanäle annahmen. Damit ergibt sich $\varepsilon_i = \frac{A}{A+cK} = 0,76 \pm 0,04$ mit Gauß'scher Fehlerfortpflanzung (trotz des relativ großen Fehlers von K ist liegt der Fehler des Verhältnisses bei nur 5,5 %).

3.2 Eisenmetall und Eichung

Den Parameterfit kann man in Abb. 3.2 und die resultierenden Parameter für Eisenmetall in Tabelle 3.1 finden, wobei wir $c = 1896 \pm 10$ Counts erhielten. Hieraus konnten wir eine Eichung vornehmen. Da die magnetische Grundzustandsaufspaltung $v_{eich} = 3,924$ mm/s beträgt (s. Anleitungsblatt), bildeten wir die Kanalnummerdifferenz zwischen dem 2. und 4. sowie zwischen dem 3. und 5. Absorptionsmaximum und erhielten die Steigung $st = \frac{v_{eich}}{\Delta x} = 0,0688 \pm 0,0004$ mm/s/Kanal. Um auch die Kanalnummer zu finden, bei der $v = 0$ gilt, betrachteten wir die maximale und die minimale Kanalnummer (25 bzw. 376), die noch endliche Werte ergaben (s. Abb. 3.3). Die Kanäle müssen der positiven und negativen Maximalgeschwindigkeit entsprechen, da es sich bei der Oszillation der Probe um eine lineare (Dreiecks-) Bewegung zwischen $\pm v_{max}$ handelt. Wir erhielten $K_0 = 200,5 \pm 0,5$, wobei wir einen Fehler von 0,5 Kanälen annahmen. Damit heißt unsere Messvorschrift für die Absorptionsmaxima $v(K) = st(K - K_0)$ und für die Halbwertsbreiten $v(b) = st \cdot b$.

Hiermit bestimmten wir die Maxima und Breiten in mm/s (s. Abb. 3.2). Dabei ist $\delta = E_\gamma \frac{v}{c_{Licht}}$ die Isomeriever-schiebung (hier ist c_{Licht} die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum), die wir berechneten, indem wir den Mittelwert zwischen dem 1. und 6., 2. und 5. sowie 3. und 4. Maximum bildeten. Insgesamt ergibt sich $\delta = -0,098 \pm 0,02$ mm/s = $-4,70 \pm 0,85$ neV.

3.3 Edlstahl und Debye-Waller-Faktor

Beim Edlstahl gibt es - anders als beim Eisenmetall - keine (erkennbare) magnetische Aufspaltung der Niveaus, sodass nur ein Absorptionsmaximum im Spektrum existiert. Dieses wurde mit einer Lorentz-Kurve angepasst (s. Abb. 3.4) und die Parameter wurden notiert: $a = -1851 \pm 131$ Counts, $b = 8,53 \pm 0,77$ Kanäle, $x_0 = 196,9 \pm 0,24$

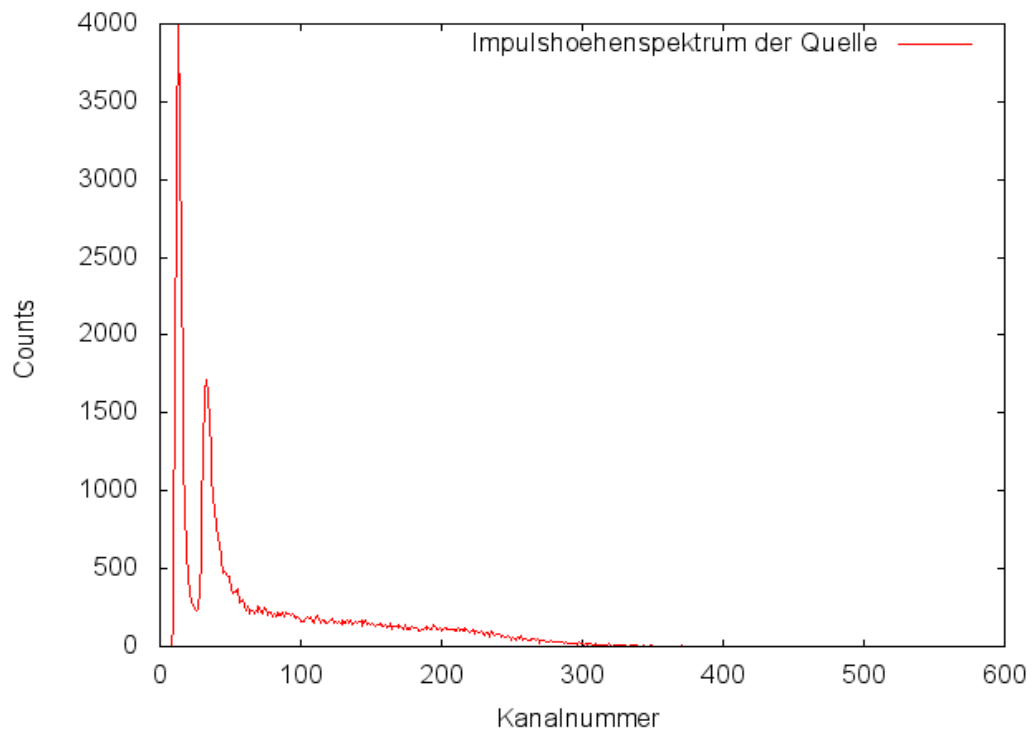


Abbildung 3.1: Impulshöhenspektrum

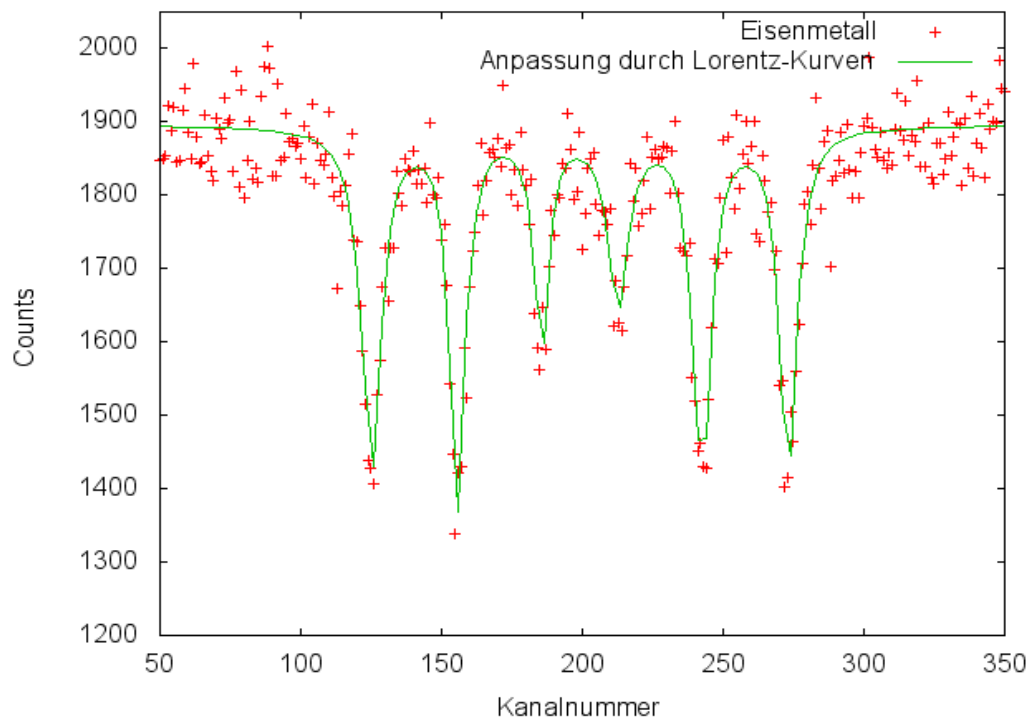


Abbildung 3.2: Eisenmetall, hineingezoomt, Fit mit Summe von Lorentzkurven

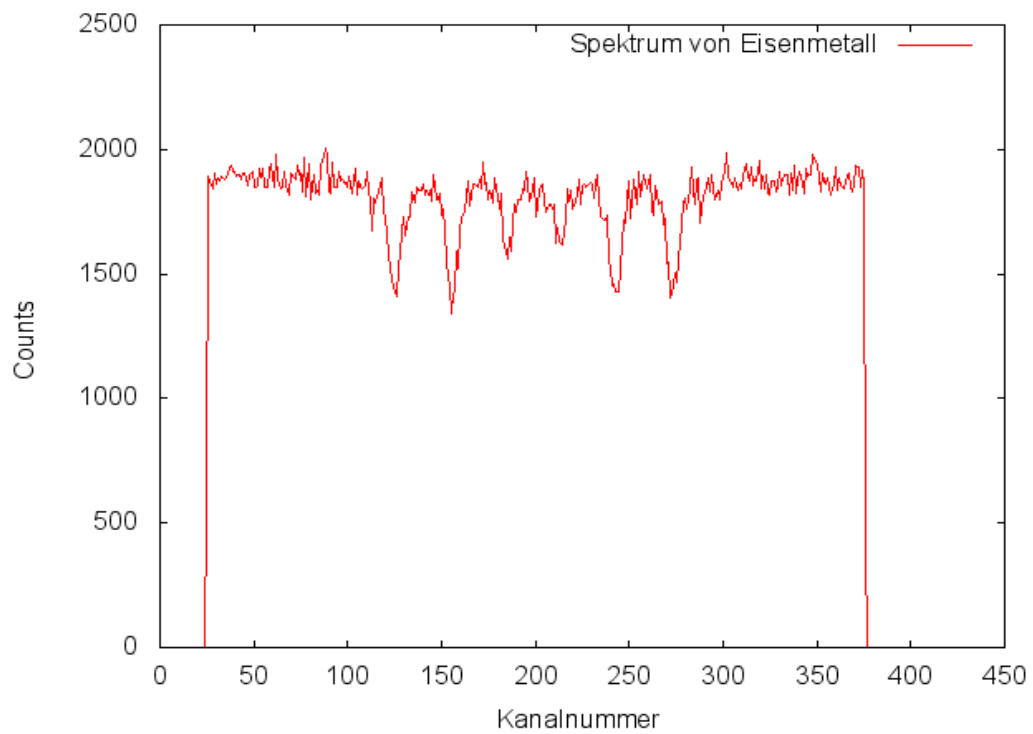


Abbildung 3.3: Eisenmetall, Messwerte ohne Fit

Nummer	a_i	Δa_i	b_i	Δb_i	x_{0i}	Δx_{0i}
1	-1941	158	8,30	0,78	125,1	0,2
2	-1708	127	6,56	0,59	155,7	0,2
3	-957	120	6,22	0,96	185,4	0,3
4	-1058	153	8,75	1,50	212,7	0,5
5	-1808	138	7,50	0,69	242,4	0,2
6	-1766	138	7,31	0,68	273,1	0,2

Tabelle 3.1: Parameter Eisenmetall

Nummer	b_i	Δb_i	x_{0i}	Δx_{0i}	δ	$\Delta \delta$
1	0,58	0,05	-5,18	0,05	-0,094	0,033
2	0,45	0,04	-3,08	0,04	-0,099	0,028
3	0,43	0,07	-1,04	0,04	-0,099	0,031
4	0,60	0,10	0,84	0,05		
5	0,52	0,05	2,88	0,04		
6	0,50	0,05	5,00	0,05		

Tabelle 3.2: Eisenmetall, Werte in mm/s

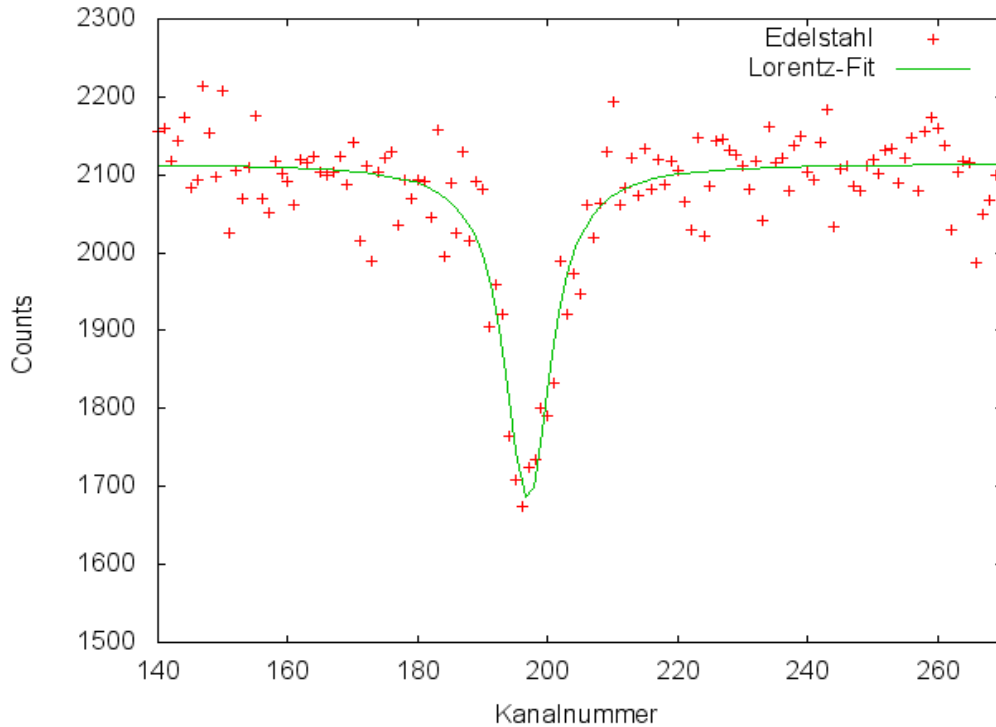


Abbildung 3.4: Edelstahl, Fit mit Lorentz-Kurve

Kanäle und $c = 2115 \pm 5$ Counts. Dies ergibt die folgenden Werte in mm/s: $x_0 = -0,25 \pm 0,04$ mm/s und $b = 0,59 \pm 0,05$ mm/s. Da es keine Aufspaltung der Niveaus gibt, ist x_0 die Isomeriewerschiebung $\delta = -11,9 \pm 0,1$ neV.

Die Tiefe beträgt $Ti = 434 \pm 50$ Counts, woraus sich die relative Tiefe zu $rel = \frac{Ti}{c} = 0,205 \pm 0,024$ ergibt. Um die Wahrscheinlichkeit ε dafür zu erhalten, dass sowohl resonante Absorption als auch rückstoßfreie Emission geschieht, muss noch der Einfluss der Untergrundmessrate berücksichtigt werden. Dabei gilt für den untergrundfreien Offset $c_{real} = c \cdot \varepsilon_l$, also $\varepsilon = \frac{Ti}{c_{real}} = \frac{rel}{\varepsilon_l} = 0,27 \pm 0,03$.

Nun soll der Debye-Waller-Faktor ausgerechnet werden. Die Formel lautet

$$f_D = \frac{\varepsilon}{1 - \exp(-t/2) \cdot J_0(it/2)} = \frac{\varepsilon}{Nenner(t)}$$

mit

$$t = \frac{f_{abs} \sigma_0 \beta \sigma}{M}$$

wobei $f_{abs} = 0,61 \pm 0,06$ der rückstoßfreie Anteil von ^{57}Fe bei Raumtemperatur $T = 293$ K und Debye-Temperatur $\theta_D = 510 \pm 75$ K (dies wurde per Lineal der im Anleitungsblatt angehängten Graphik entnommen), $\sigma_0 = 2,56 \cdot 10^{-18}$ cm² der Wirkungsquerschnitt, $\beta = 0,55 \cdot 0,0214 = 0,0118$ der Anteil von ^{57}Fe in Edelstahl, $\sigma = 10,2$ mg/cm² die Flächendichte und $M = 57u = 9,47 \cdot 10^{-20}$ mg die Masse eines ^{57}Fe -Atoms sind. Hieraus ergibt sich $t = 2 \pm 0,2$ und in einer anderen dem Anleitungsblatt angehängten Graphik lässt sich $Nenner(t)$ zu $0,53 \pm 0,02$ bestimmen (der Nenner gibt den Einfluss der Dicke des Absorbers an, t ist die effektive Absorberdicke). Daraus folgt $f_D = 0,51 \pm 0,07$, was sehr weit vom erwarteten Wert $f_{lit} = 0,91$ entfernt ist. Dies könnte an systematischen Fehlern liegen wie einer zu ungenauen Bestimmung des Untergrunds, zu klein angesetzten Fehlern und ähnlichem.

Die Absorption durch nichtresonante Prozesse I/I_0 beträgt mit $\mu = 42$ cm²/g und $\sigma = 10,2$ mg/cm²:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\sigma\mu} = 0,65$$

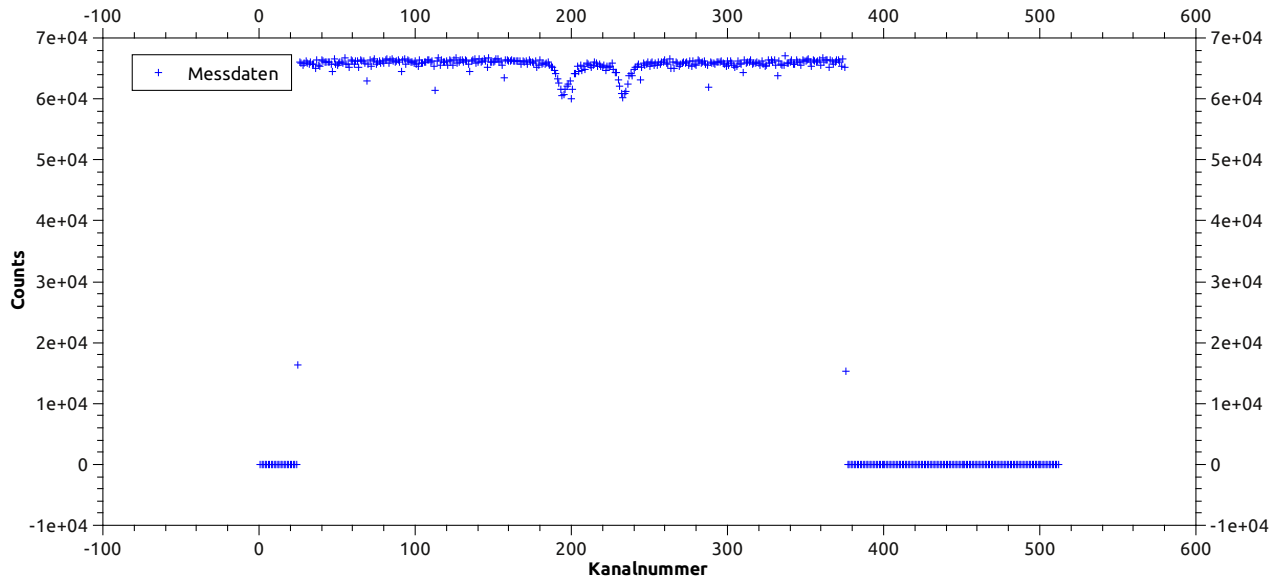


Abbildung 3.5: Messdaten von Borazit

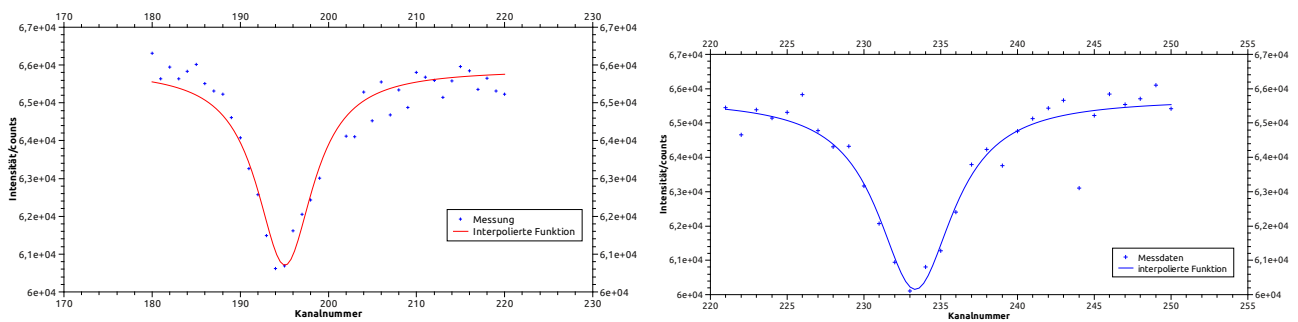


Abbildung 3.6: Interpolierte Funktionen zu beiden Einbrüchen von Borazit

3.4 Borazit

Die Messung von Borazit hat mehrere Stunden gedauert. Folgende Ergebnisse hat sie geliefert.

Beim Borazit beobachtet man nur eine elektrische Quadrupolaufspaltung, daher nur zwei "Einbrüche" auf dem Transmissionsdiagramm. Die Anfitung beider Einbrüche mit der Funktion 3.1 (unter Ausschluss von drei offensichtlichen Ausreißern) ergab für die Breite Γ_i und die Lage E_i in mm/s:

Nummer	$\Gamma_i / \frac{mm}{s}$	$\Delta\Gamma_i / \frac{mm}{s}$	$E_i / \frac{mm}{s}$	$\Delta E_i / \frac{mm}{s}$
1	0,537	0,055	-0,3715	0,0022
2	0,413	0,055	2,2566	0,0131

Damit ergab sich für die Isomerieverschiebung: $\delta = \frac{E_\gamma \overline{E}_i}{c} = (6,311 \pm 0,064) \cdot 10^{-8} eV$.

Für die Quadrupolaufspaltung ergibt sich: $\Delta E = |E_1| + |E_2| = 2,628 \pm 0,013 \frac{mm}{s} = (1,262 \pm 0,006) \cdot 10^{-7} eV$ als Energiedifferenz. Mit Quadrupolmoment $Q = (0,21 \pm 0,01) \cdot 10^{-28} m^2$ (siehe Anleitungsblatt) ergibt sich für den Feldgradienten in die Richtung der Aufspaltung: $(\nabla \vec{E})_z = \frac{2\Delta E}{eQ} = 1,2 \cdot 10^{22} V/m^2$

3.5 Lebensdauer des angeregten Zustandes von ^{57}Fe

Die Abschätzung der Lebensdauer des angeregten Zustandes erfolgt mit Hilfe der Heisenbergschen Unschärferelation: $\tau = \frac{\hbar}{\Gamma}$. Die zuvor bestimmten Linienbreiten und die dazugehörigen Lebensdauern sind in der folgenden Tabelle zusammengefasst:

	$\Gamma / \frac{\text{mm/s}}{\times}$	Γ / eV	Γ / J	τ / s
Eisen	0,58	2,784E-008	4,45E-27	2,36E-008
	0,45	2,16E-008	3,46E-27	3,05E-008
	0,43	2,064E-008	3,30E-27	3,19E-008
	0,6	2,88E-008	4,61E-27	2,28E-008
	0,52	2,5E-8	3,99E-27	2,64E-008
	0,5	2,4E-8	3,84E-27	2,74E-008
Stahl	0,59	2,832E-008	4,53E-27	2,32E-008
Borazit	0,537	2,5776E-008	4,12E-27	2,55E-008
	0,413	1,9824E-008	3,17E-27	3,32E-008

Die minimale gemessene Lebensdauer ist damit $\tau_{\min} = 22,8 \text{ ns}$, was viel kleiner als der Literaturwert $\tau_{\text{lit}} = 140 \text{ ns}$ ist. Diese Abweichung kann durch folgende Effekte begründet werden:

- Der **geometrische Aufbau** der Messanordnung erlaubt die Registrierung der Gamma-Strahlen nur in einem relativ kleinen Raumwinkel, wobei wie Strahlen in alle Raumrichtungen fliegen können. Wenn ein Gamma-Quant nicht senkrecht auf den Absorber trifft, wird nur die Projektion der Geschwindigkeit auf die Normale zur Oberfläche des Absorbers wahrgenommen und erscheint damit kleiner.
- Bei **größeren Dicke** des Absorbers kann Mehrfachstreuung auftreten. Bei kleineren Dicken und größerer Intensität der Bestrahlung können Sättigungseffekte auftreten.
- Die **Selbstabsorption der Quelle** verringert die Intensität der Strahlung, ändert aber nichts an der gemessenen Linienbreite.
- **Nichtaufgelöste Hyperfeinaufspaltung** bei kleinen Magnetfeldern führt zur Verbreiterung der gemessenen Linien, da die kleine Aufspaltung nicht aufgelöst werden kann.

Literaturverzeichnis

- [1] Kernphysik, Mayer-Kuckuk, Teeubner, 7. Auflage, 2002.
- [2] Mössbauer Spektroskopie and Transitional Metal Chemistry, Ph. Gütlich, R. Link, A. Trautwein, Springer Series, Inorganic Chemistry Concepts 3, 1978