Technische Universität Darmstadt

WS 2007/2008

Versuchsausarbeitung

# Versuch 2.4 Mößbauerspektroskopie an ${}^{57}Fe$

Bastian Löher und Antje Weber

April 2008

Betreuer: Dr. Jörg Leske

# Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung	3					
	1.1	Rückstoßenergie bei $\gamma$ -Emission in Gas	3					
	1.2	Linienbreite	3					
	1.3	Rückstoßfreie Resonanzabsorption in Festkörpern	3					
	1.4	Der Debye-Waller-Faktor	4					
	1.5	Zerfallsschema von ${}^{57}Co$	4					
	1.6	Messbare Effekte im Spektrum	5					
2	Vers	Versuchsdurchführung						
	2.1	Versuchsaufbau	7					
	2.2	Aufnahme des ${}^{57}Co$ -Impulshöhenspektrums mit Edelstahlabsorber $\ldots$ $\ldots$	8					
	2.3	Aufnahme der zeitabhängigen Spektren	8					
3	Auswertung							
	3.1	Lagebestimmung der Resonanzlinien	10					
	3.2	Bestimmung des Debye-Waller-Faktors der Quelle	11					
	3.3	Eingrenzung der Lebensdauer des 14,4 keV Niveaus	12					
	3.4	lsomerieverschiebung	13					
	3.5	Quadrupolwechselwirkung und Feldgradient	13					

## 1 Einleitung

#### 1.1 Rückstoßenergie bei $\gamma$ -Emission in Gas

Der Impuls eines  $\gamma$ -Quants ist gegeben durch

$$p_{\gamma} = \frac{E_{\gamma}}{c} \tag{1}$$

dies folgt aus der Energie

$$E_{\gamma} = \sqrt{p_{\gamma}^2 c^2 + E_0^2} \tag{2}$$

Da ein  $\gamma$ -Quant keine Ruhemasse hat, besitzt es auch keine Ruheenergie

$$E_0 = 0 \Rightarrow E_\gamma = p_\gamma c \tag{3}$$

Die Rückstoßenergie, die bei der Emission eines  $\gamma$ -Quants frei gesetzt wird, ist

$$E_R = \frac{p_\gamma^2}{2M} \tag{4}$$

wobei M bei Gasen die Masse des Atomkerns ist. (Für ein Gitter wird hier die Gittermasse eingesetzt).

#### 1.2 Linienbreite

Wie in Abb. 1 zu sehen ist, werden die Quanten nicht mit einer diskreten Energie absorbiert oder emittiert, sondern über einen gewissen Energiebereich. Dies geschieht aufgrund der Unschärferelation  $\Delta E \cdot \Delta t \leq \hbar$ . Daraus ergibt sich eine Lorentzverteilung für die Energie mit der Linienbreite  $\Gamma$ , die durch die Lebensdauer eines angeregten Zustandes  $\Delta t = \frac{T_1}{\ln(2)}$  gegeben ist mit:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\Delta t} \tag{5}$$

#### 1.3 Rückstoßfreie Resonanzabsorption in Festkörpern

Betrachen wir noch einmal die Formel für die Rückstoßenergie:

$$E_R = \frac{p_\gamma^2}{2M} \tag{6}$$

Für ein Gitter wird hier die Gittermasse für M eingesetzt. Man sieht, dass die Rückstoßenergie in einem Atomgitter sehr klein wird, da die Masse des Gitters groß ist. Außerdem können nur diskrete Energien von dem Gitter aufgenommen werden, da Phononen (Gitterschwingungen) quantisiert sind. Das heißt, die Absorption bzw. Emmission von  $\gamma$ -Quanten erfolgt in einem Atom-Gitter nahezu Rückstoßfrei. Diesen Effekt nennt man Mößbauer-Effekt.



Abbildung 1 - Linienbreite

#### 1.4 Der Debye-Waller-Faktor

Der Anteil der rückstoßfrei emittierten  $\gamma$ -Quanten wird als Debye-Waller-Faktor  $f_D$  bezeichnet. Er ist gegeben durch:

$$f_D(T) = \exp\left\{-\frac{6E_R}{k_B\Theta_D}\left(\frac{1}{4} + \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^2 \int_0^{\frac{\Theta_D}{T}} \frac{x}{e^x - 1} dx\right)\right\}$$
(7)

#### **1.5 Zerfallsschema von** <sup>57</sup>Co

Das Zerfallsschema von  ${}^{57}Co$  ist in Abb. 2 dargestellt. Überwiegend zerfällt  ${}^{57}Co$  durch Elektroneneinfang (electron capture) zu  ${}^{57}Fe$ . Dabei wird ein K-Elektron vom Atomkern eingefangen, um dort mit einem Proton ein Neutron und ein Elekronneutrino zu bilden:

$$p + e \rightarrow n + \nu_e$$
 (8)

Der  ${}^{57}Fe$  Kern befindet sich nun jedoch noch in einem angeregten Zustand und geht durch Emission eines  $\gamma$ -Quants zu ca. 88 Prozent mit der Energie 136 keV in einen Zwischenzustand und zerfällt von dort in den Grundzustand. Zu ca. 12 Prozent wird ein  $\gamma$ -Quant der Energie 14,4 keV emittiert, mit der wir im Versuch arbeiten. Beim Zerfall ändert sich der Kernspin von  $I = -\frac{5}{2}$  über  $I = -\frac{3}{2}$  auf  $I = -\frac{1}{2}$ .



Zerfallsschema von 57 Co

Abbildung 2 – Zerfallsschema

#### 1.6 Messbare Effekte im Spektrum

• Isomerieverschiebung (Elektrische Monopolwechselwirkung)

Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit halten sich s-Elektronen eines Atoms auch im Atomkern auf. Dies bewirkt eine Potenzialänderung des Kerns, duch Änderung des Kernladungsradius R auf R+ $\Delta$ R (im Falle von  ${}^{57}Fe$  wird der Kernladungsradius kleiner, also R- $\Delta$ R). Dabei werden die Energieniveaus von Grund- und angeregtem Zustand unterschiedlich verschoben (siehe Abb. 3). Es ist zu beachten, dass beim Absorber ein anderer Energieunterschied resultiert, als bei der Quelle.



Abbildung 3 - Isomerieverschiebung

• Magnetische Dipolwechselwirkung

Durch die Wechselwirkung zwischen magnetischem Moment des Kerns und dem Magnetfeld am Kernort, entsteht eine Hyperfeinaufspaltung. Mit den Auswahlregeln  $\Delta m = 0, \pm 1$  sind insgesamt sechs Übergänge zwischen den Kernniveaus beobachtbar. Dabei spaltet sich die magnetische Quantenzahl m auf in  $m = \pm \frac{1}{2}$  für den Grundzustand mit  $I = \frac{1}{2}$  und in  $m = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}$  für den angeregten Zustandt mit  $I = \frac{3}{2}$ .

magnetische Dipolaufspaltung



Abbildung 4 - magnetische Dipolaufspaltung

• Elektrische Quadrupolwechselwirkung und Feldgradient

Die Quadrupolaufspaltung entsteht durch die Wechselwirkung zwischen dem Kernquadrupolmoment und dem inhomogenen elektrischen Feld (Feldgradient) des Kernes. Wie in Abb. 2 zu sehen ist, ist der Kernspin für den Grundzustand  $I = -\frac{1}{2}$  und für den angeregten Mößbauer-Zustand  $I = -\frac{3}{2}$ . Damit ergibt sich eine Aufspaltung in zwei Linien vom angeregten Zustand in den Grundzustand.



Abbildung 5 – elektrische Quadrupolaufspaltung

# 2 Versuchsdurchführung

Die Versuchsdurchführung bestand aus zwei Teilen. Zunächst haben wir ein Impulshöhenspektrum der  ${}^{57}Co$ -Quelle und eingesetztem Edelstahlabsorber aufgenommen, um die Lage der 14,4 keV Linie zu finden. Anschließend haben wir drei zeitabhängige Mößbauer-Spektren mit den drei verschiedenen Absorbern gemessen.

#### 2.1 Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau ist schematisch in Abb. 6 dargestellt. Die Quelle ist in einem elektromagnetisch getriebenen Gehäuse befestigt und kann linear bewegt werden. Ein auswechselbarer Absorber ist vorne vor der Quelle montiert und ist unbewegt. Die emittierte Strahlung der Quelle wird von einem Proportionalzählrohr erfasst, das auch kleine Energien (wir benutzen hier einen 14,4 keV Übergang) auflösen kann.

Die Messelektronik besteht im Wesentlichen aus dem Hauptverstärker und einem Einkanaldiskriminator, die dafür sorgen, dass möglichst nur Gammas der Energie 14,4 keV zum Spektrum beitragen. Dafür wird der Ausgang des Einkanaldiskriminators auf den GATE-Eingang des ADC gelegt. Der Funktionsgenerator sorgt mit einem Dreiecksignal für den Antrieb der Quelle und gleichzeitig für die Kanalauswahl des ADC. Wird nun ein Gamma mit der passenden Energie registriert, erhöht der ADC den Kanal der zur aktuellen Geschwindigkeit passt.

Die Datenaufnahme geschieht mit einem PC und dem Programm WinTMCA, das für die Aufnahme von Spektren gut geeignet ist.



Abbildung 6 – Versuchsaufbau

#### 2.2 Aufnahme des <sup>57</sup>Co-Impulshöhenspektrums mit Edelstahlabsorber

Das Impulshöhenspektrum wird mit ruhender Quelle und eingesetztem Edelstahlabsorber aufgenommen. Der Einkanaldiskriminator wird nicht verwendet, stattdessen wird das Signal des Verstärkers sofort vom ADC aufgenommen. Wir haben etwa zwei Minuten gemessen. Das aufgenommene Spektrum ist in Abb. 7 dargestellt.



Abbildung 7 – Impulshöhenspektrum

#### 2.3 Aufnahme der zeitabhängigen Spektren

Die zeitabhängigen Spektren werden mit durch den Funktionsgenerator bewegter Quelle aufgenommen. Der Einkanaldiskriminator schränkt dabei die Energie der registrierten Gammaquanten auf ein schmales Band um die 14,4 keV Linie der Quelle ein. In Abhängigkeit der Geschwindigkeit der Quelle werden die Counts im ADC in unterschiedliche Kanäle einsortiert. Die Spektren werden alle über einen Zeitraum von einer halben Stunde aufgenommen.

#### 2.3.1 Eisenabsorber

Um Informationen aus den Spektren zu erhalten, muss die Geschwindigkeitsskala geeicht werden. Wir wissen, dass im Eisenspektrum die magnetische Grundzustandsaufspaltung  $3,924\frac{mm}{s}$ beträgt. Der Vergleich der Kanäle der Peaks 3 und 5 respektive 2 und 4, die sich jeweils um die Energie der Grundzustandsaufspaltung unterscheiden, ergeben einen Unterschied von 56 bzw. 55 Kanälen, was im Mittel eine Breite von  $0,0702\frac{mm}{s}$  pro Kanal bedeutet. Der Mittelpunkt des Spektrums (Kanal 202) bedeutet Geschwindigkeit 0. Aus dieser Überlegung folgt die Eichgerade:

$$v(ch) = (ch - 202) \cdot 0,0702 \tag{9}$$



Abbildung 8 – Zeitabhängiges Spektrum mit Eisenabsorber.



Abbildung 9 – Zeitabhängiges Spektrum mit Borazitabsorber.

#### 2.3.2 Borazitabsorber

Um das Spektrum des Borazitabsorbers deutlich aufzunehmen hat die halbe Stunde Messzeit leider nicht ausgereicht. Wir versuchen, die gewonnenen Daten möglichst gut zu interpretieren.

#### 2.3.3 Edelstahlabsorber

Das Spektrum des Edelstahlabsorbers ist in der kurzen Zeit sehr gut ausgefallen und der Peak kann gut bestimmt werden.



Abbildung 10 – Zeitabhängiges Spektrum mit Edelstahlabsorber.

# 3 Auswertung

#### 3.1 Lagebestimmung der Resonanzlinien

Die Lagebestimmung wird durch Fits mit lorentzförmigen Profilen der Art

$$f_L(v) = \frac{A_0 \cdot \frac{\Gamma}{2}}{(v - v_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}$$
(10)

durchgeführt. Dazu haben wir das Programm gnuplot verwendet, um auch die Güte der Anpassung zu überprüfen und Fehlerangaben machen zu können.

• Eisen

Das Eisenspektrum (Abb. 8) zeigt 6 verschiedene Peaks. Die gemessenen Werte sind in Tab. 1 zusammengefasst. Die Fehler für die Lage  $(v_0)$  sind jeweils kleiner als 0.2%, die Fehler für die Breite  $(\Gamma)$  liegen bei etwa 10%.

Peak	Lage [ch]	Lage $\left[\frac{mm}{s}\right]$	Tiefe [cnts]	Relative Tiefe [%]	Breite [ch]	Breite $\left[\frac{mm}{s}\right]$
1	127	-5.30	382	29	8	0.54
2	157	-3.14	415	32	7	0.50
3	187	-1.05	269	21	8	0.53
4	213	0.76	216	17	9	0.61
5	243	2.91	373	29	7	0.53
6	274	5.06	352	27	9	0.66

Tabelle 1 – Gemessene Werte für Eisenabsorber

• Borazit

Das Borazitspektrum (Abb. 9) weist 2 verschiedene Peaks auf. Deren gemessene Werte sind in Tab. 2 zusammengefasst. Die Fehler für die Lage  $(v_0)$  sind jeweils kleiner als 0.5%, die Fehler für die Breite ( $\Gamma$ ) liegen bei etwa 30%, weil für diese Messung leider sehr wenig Daten vorliegen um gute Aussagen machen zu können.

Peak	Lage [ch]	Lage $\left[\frac{mm}{s}\right]$	Tiefe [cnts]	Relative Tiefe [%]	Breite [ch]	Breite $\left[\frac{mm}{s}\right]$
1	198	-0.28	61	15	7	0.48
2	235	2.32	44	11	9	0.61

Tahelle	2 _	Gemessene	Werte f	ür	Borazitahsorher
Tabelle	<b>Z</b> –	Geniessene	vverte i	ur	Dorazitabsorber

• Edelstahl

Das Edelstahlspektrum (Abb. 10) zeigt nur einen einzigen Peak. Die gemessenen Werte sind in Tab. 3 zusammengefasst. Der Fehler für die Lage  $(v_0)$  ist 0.16%, der Fehler für die Breite  $(\Gamma)$  liegt bei 13%. Damit ist der Peak recht genau bestimmt.

Peak	Lage [ch]	Lage $\left[\frac{mm}{s}\right]$	Tiefe [cnts]	Relative Tiefe [%]	Breite [ch]	Breite $\left[\frac{mm}{s}\right]$
1	199	-0.19	171	28	7	0.49

Tabelle 3 – G	iemessene We	erte für Edels <sup>.</sup>	tahlabsorber
---------------	--------------	-----------------------------	--------------

#### 3.2 Bestimmung des Debye-Waller-Faktors der Quelle

Um den Debye-Waller-Faktor der Quelle zu berechnen, müssen wir zunächst den Debye-Waller-Faktor des Absorbers bestimmen. Der Debye-Waller-Faktor (vgl. Gl. 7) gibt den Anteil der rückstoßfrei absorbierten Gammaquanten an. Die für Edelstahl benötigten Werte setzen wir wie folgt:

- Umgebungstemperatur: T = 294K
- Debye-Temperatur von Edelstahl:  $\Theta_D = 510 \pm 75K$

und erhalten den Debye-Waller-Faktor des Absorbers

$$f_{D,A}(T,\Theta_D) \approx 0.846\tag{11}$$

Die so genannte effektive Dicke des Absorbers t lässt sich aus dem Debye-Waller-Faktor bestimmen:

$$t = \frac{f_{D,A}(T,\Theta_D)\sigma_0\beta\rho_A}{M} \tag{12}$$

Mit

- Wirkungsquerschnitt für resonante Absorption  $\sigma_0: 2,56 \cdot 10^{-18} cm^2$
- Anzahl für resonante Absorption zur Verfügung stehende Atome  $\beta$ : 0,01177
- Massendichte  $\rho_A$ : 10,  $2\frac{mg}{cm^2}$
- Masse M:  $94,65 \cdot 10^{-27} kg$

ergibt sich

$$t \approx 2.749\tag{13}$$

Der Debye-Waller-Faktor der Quelle ist der Quotient aus der Wahrscheinlichkeit  $\mathbb{P}$ , dass ein Gammaquant rückstoßfrei emittiert und resonant absorbiert wird und der Wahrscheinlichkeit  $\alpha$ , dass das Gammaquant resonant absorbiert wird.

$$f_D = \frac{\mathbb{P}}{\alpha} \tag{14}$$

wobei  $\mathbb{P}$  der Quotient aus der relativen Tiefe des Edelstahlpeaks  $T_{rel}$  und dem Peak-To-Total Verhältnis  $\epsilon$  ist.  $\epsilon$  erhalten wir aus dem Verhältnis der Integration einer an den 14,4 keV Peak angefitteten Gauß-Funktion und der Integration über das Impulsspektrum (Abb. 7) im Bereich von 10 bis 20 keV.  $\alpha$  erhalten wir aus folgender Gleichung

$$\alpha = 1 - e^{-t/2} J_0\left(\frac{it}{2}\right) \tag{15}$$

mit der nullten Besselfunktion  $J_0$  und der effektiven Absorberdicke t. Damit erhalten wir schließlich den Debye-Waller-Faktor der Quelle

$$f_D = \frac{\mathbb{P}}{\alpha} = \frac{T_{\text{rel}}}{\epsilon \,\alpha} = \frac{0.28}{0.795 \ 0.613} = 0.57 \tag{16}$$

Dieser Wert des Debye-Waller-Faktors weicht sehr stark von der Angabe in der Literatur von 0,91 ab. Diese Abweichung lässt sich durch eine Mischung aus geringer Statistik, Beiträgen aus nicht berücksichtigten Effekten und einer schlechten Fehlerabschätzung erklären.

#### 3.3 Eingrenzung der Lebensdauer des 14,4 keV Niveaus

Die Lebensdauer des 14,4 keV Niveaus lässt sich durch eine untere Grenze zumindest grob abschätzen. Dazu verwenden wir die gemessenen Linienbreiten der Spektren und nutzen wie oben beschrieben die Unschärferelation:

$$\tau = \hbar/\Gamma \tag{17}$$

Aus den Werten für die Linienbreiten mit den kleineren Fehlern (Eisen und Edelstahl) ergibt sich der gemittelte Wert von  $0.5509 \frac{mm}{s}$  für die Linienbreite, was mit Hilfe der Gammaenergie  $E_{\gamma}$  einer Energiebreite von 26, 49neV entspricht. Mit obiger Formel erhalten wir eine erste Abschätzung für die Lebensdauer von 24, 85ns.

Der Literaturwert von 97, 8ns liegt allerdings wesentlich höher als diese erste Abschätzung, denn durch verschiedene andere Faktoren wird die Breite der Linie noch weiter vergrößert.

**Geometrie des Aufbaus** Bedingt durch die Geometrie des Aufbaus wird auch indirekt und insbesondere schräg einfallende Gammastrahlung im Detektor registriert. Dieser Anteil der Strahlung hat nicht die volle Dopplerenergie und sorgt so für eine Verbreiterung der Linie.

**Dickenabhängigkeit der Linienbreite** Die Linienbreite hängt von der effektiven Dicke des Absorbers ab, da bei entsprechender Dicke Sättigungseffekte im Absorber auftreten können.

**Selbstabsorption der Quelle** In der Quelle selber kann resonante Absorption auftreten, so dass einige Gammas aus der Mitte des Peaks nicht im Spektrum auftauchen. Dadurch flacht der Peak ab und wird breiter.

Nichtaufgelöste Hyperfeinaufspaltung Durch die schlechte Statistik können eventuelle Hyperfeinaufspaltungen nicht aufgelöst werden, sondern erscheinen als Verbreiterung des Peaks.

#### 3.4 Isomerieverschiebung

Die Isomerieverschiebung ergibt sich beim Edelstahlspektrum aus dem Abstand des Peaks vom Nullpunkt und bei den anderen beiden Spektren aus dem Abstand des Mittelpunkts zweier zusammengehöriger Peaks vom Nullpunkt. Die Geschwindigkeit  $v_0$  kann mit folgender Formel in die Dopplerenergie  $E_D$  umgerechnet werden.

$$E_D = \frac{v_0}{c} E_\gamma \tag{18}$$

- Eisen: Für Eisen betrachten wir die 3 Paare der Peaks einzeln und bilden dann den Mittelwert. Es ergibt sich als mittlere Isomerieverschiebung ein Wert von  $-0.13 \frac{mm}{s}$  bzw. -5.77 neV
- Borazit: Die größte Isomerieverschiebung erhalten wir bei Borazit mit  $1,02\frac{mm}{s}$  oder 49,04neV
- Edelstahl: Der Abstand der Linie vom Mittelpunkt ist  $-0, 19 \frac{mm}{s}$  bzw. -9, 13 neV

#### 3.5 Quadrupolwechselwirkung und Feldgradient

Beim Borazitabsorber sorgt die elektrische Quadrupolwechselwirkung für eine Aufspaltung in zwei Peaks. Aus dem Abstand der beiden Peaks erhalten wir den Energieunterschied der beiden entstandenen Niveaus und somit die Energie der Quadrupolwechselwirkung  $E_Q$ , die der Hälfte des Energieunterschiedes entspricht. Wir erhalten als Geschwindigkeitsunterschied  $\Delta v = 1,30 \frac{mm}{s}$  und damit als Energie  $E_Q = 62,47 neV$ . Mit Hilfe des Quadrupolmomentes von Eisen  $Q = 0,21 \cdot 10^{-28} m^2$  können wir den Feldgradienten am Kernort

$$\frac{\partial E_z}{\partial z} = -\frac{4 E_Q}{e Q} = -1,19 \cdot 10^{22} \frac{V}{m^2}$$
(19)

berechnen.