

Mössbauer-Effekt

Moritz Bubek, moritz.bubek@uni-konstanz.de
Dennis Rettinger, dennis.rettinger@uni-konstanz.de

7. November 2004

Sinn und Zweck des Mössbauer-Effekts ist eigentlich die Bestimmung von Materialien anhand deren magnetischen und elektrischen Eigenschaften. In diesem Versuch beobachten wir allerdings die magnetische und elektrische Hyperfeinwechselwirkung von uns bereits bekannten chemischen ^{57}Fe -Verbindungen mittels rückstoßfreier Kernresonanzabsorption.

1 Theoretische Grundlagen

1.1 Allgemeines

Emittiert der Kern eines freien Atomes bei einem Übergang ein γ -Quant, so erfährt der Kern einen Rückstoß und das Quant hat etwas weniger Energie als Differenz zwischen den beteiligten Niveaus entspricht. Der gleiche Effekt tritt auch bei der Absorption eines Quants auf.

Das Quant muss in diesem Fall für die Energie aufkommen, die nötig ist um den Kern anzuregen, und zusätzlich noch die kinetische Energie, die der Kern durch Aufnahme des Impulses vom Quant bekommt. Mössbauer fand 1957 heraus, dass dieser Effekt vermieden werden kann, wenn man das Atom in ein Kristallgitter einbaut. Dadurch wird der Rückstoßimpuls auf den gesamten Kristall übertragen. Wegen der großen Masse des Kristalls findet dadurch aber praktisch keine Energieübertragung statt. Die Emission bzw. Absorption ist somit unverschoben. Diesen Vorgang bezeichnet man als Mößbauer-Effekt.

1.2 Linienbreite

1.2.1 Natürliche Linienbreite

Ein Kernzustand mit der mittlerer Lebensdauer τ_N zeigt ein durch die Lorentzverteilung gegebenes Emissionsspektrum mit der Halbwertsbreite $1/\tau_N$, also mit einer Energieunschärfe $\Gamma = \hbar/\tau_N$. Die Größe Γ bezeichnet man als natürliche Linienbreite. Ohne weitere Effekte erwarten wir nach [1] ein Frequenzspektrum

$$I(\omega) = \frac{I_0}{1 + [2\hbar(\omega - \omega_0)/\Gamma]^2}.$$

Hier entspricht $\hbar\omega_0$ der Energie des betrachteten Zustands bezogen auf die des Grundzustandes und $I(\omega)$ die Intensität der Strahlung mit der Frequenz ω .

1.2.2 Rückstoß und Doppler-Verschiebung

Sendet ein Kern ein γ -Quant aus, so erfährt der Kern einen Rückstoß, der zur Verringerung der Energie des γ -Quants führt. Vor der Emission besitzt der freie angeregte Atomkern die Energie

$$E_{vor} = E_a + \frac{\vec{p}^2}{2M},$$

wobei $\vec{p} = M\vec{v}$ der Impuls und M die Masse des Atoms ist. Der Impuls des Atoms ist nach der Emission um den Impuls $\hbar\vec{k}$ des γ -Quants reduziert. Weiterhin ist die Energie im angeregten Zustand durch die des Grundzustandes zu ersetzen. Die Energie nach der Emission beträgt dann

$$E_{nach} = E_g + \frac{(\vec{p} - \hbar\vec{k})^2}{2M}.$$

Die Energiedifferenz ist also durch

$$E_{vor} - E_{nach} := \hbar\omega = \hbar\omega_0 + \hbar(\vec{k}\vec{v}) - \frac{\hbar^2\vec{k}^2}{2M}$$

gegeben. Hierbei beschreibt der Term $\hbar(\vec{k}\vec{v})$ den geschwindigkeitsabhängigen Doppler-Effekt. Der Rückstoßterm ist durch $\frac{\hbar^2\vec{k}^2}{2M}$ gegeben.

Das Absorptionsspektrum erhält man durch Spiegelung an der Zentralfrequenz ω_0 . Die Absorptionslinie ist zu größeren Frequenzen hin verschoben, da mehr Energie zur Verfügung stehen muss als der Anregungsenergie entspricht.

1.3 Kernresonanzfluoreszenz

Die scharfen Linien, die beim Mössbauer-Effekt detektiert werden, beruhen auf dem Phänomen der Resonanzfluoreszenz: Regt man freie Atome mit Licht aus einer bestimmten Richtung an, so absorbieren sie es, strahlen in alle Richtungen ab, regen andere an, etc. Dies nennt man Resonanzfluoreszenz und ist möglich, da aufgrund der Linienverbreiterung die Absorptions- und Emissionslinien überlappen. Man erwartet also, dass sich die Transmission durch die Probe bei der Resonanzfrequenz eines Kernübergängen stark reduziert, jedoch Streuung bemerkt werden kann. Im sichtbaren Bereich stimmt das auch, jedoch sind bei höherenergetischen γ -Quanten die Absorptions- und Emissionslinien zu stark getrennt, so dass bei freien Atomen eine solche Resonanzfluoreszenz nicht mehr möglich ist. Durch den Einbau in einen Kristall wird jedoch die Trennung der Linien aufgehoben, wodurch der Effekt dann wieder auftreten kann.

1.4 Der Debye-Waller-Faktor

Ist das betrachtete Atom in einem Gitter eingebaut, so erfolgen Absorption und Emission wie erwähnt rückstoßfrei. Es kann bestenfalls vorkommen, dass Energie an Gitterschwingungen abgegeben wird. Deshalb hebt sich die Mössbauerlinie stark vom quasikontinuierlichen Nebenlinienspektrum ab. Der Verhältnis zwischen der Anzahl unverschobener γ -Emissionen zu allen γ -Emissionen wird als *Debye-Waller-Faktor* f bezeichnet. Dieser Faktor ist temperaturabhängig und nimmt seinen maximalen Wert bei verschwindender Temperatur an. Auch dann sind jedoch im Kristallgitter Nullpunktsschwingungen vorhanden, weshalb f auch in diesem Fall immer kleiner als 1 ist.

Klassische Erklärung Als einfaches klassisches Modell kann man einen kontinuierlich abstrahlenden Atomkern betrachten, der um seine Gleichgewichtslage schwingt. Dadurch wird die Hauptlinie bei ω_0 geschwächt (Schwächung entspricht Debye-Waller-Faktor), während Nebenlinien auftreten. Für verschiedene Schwingungsfrequenzen liefert jede Phononenfrequenz einen Beitrag zur Hauptlinie.

Betrachtet man nur eine Frequenz Ω , ergibt sich nach [1] folgender Zusammenhang zwischen dem Debye-Waller-Faktor und der Zustandssumme $Z(\Omega)$:

$$f_D(T) = \exp\left(-\frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{6mN} \int_0^\infty \frac{Z(\Omega)}{\Omega} \cdot \left[1 + \frac{2}{\exp(\hbar\Omega/k_B T) - 1}\right] d\Omega\right)$$

Unter Verwendung der Debye-Zustandssumme $Z(\Omega) = \frac{9N\hbar^3}{k_B^3} \frac{\Omega^2}{\theta^3}$, wobei θ die Debye-Temperatur ist, erhält man bei tiefen Temperaturen T für den Debye-Waller-Faktor

$$f_D(T) = \exp\left(-\frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2M} \frac{3}{2k_B\theta} \left[1 + \frac{2\pi^2}{3} \left(\frac{T}{\theta}\right)^2\right]\right).$$

Quantenmechanische Korrekturen Das klassische Modell liefert eine symmetrische Verteilung des quasikontinuierlichen Untergrundes um die unverschobene Mössbauerlinie. Quantenmechanisch ergibt sich, dass der Schwerpunkt des Untergrundes immer bei kleineren Frequenzen liegt. Die Verschiebung entspricht gerade der Recoilenergie für ein freies Emittieratom. Der klassisch errechnete Wert für f gilt jedoch auch im quantenmechanischen Fall.

Wichtige Zusammenhänge:

- Durch Messung des Debye-Waller-Faktors kann man das Frequenzspektrum $Z(\omega)$ eines Festkörpers bestimmen.
- Bei wachsender Rückstoßenergie $\frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m}$ wird der Debye-Waller-Faktor kleiner. Da $\hbar k = E_\gamma/c$, darf E_γ beim Mössbauer-Effekt nicht zu gross werden, sondern sollte in der Größenordnung $E_\gamma < 100\text{keV}$ liegen.
- Die Temperatur sollte nicht zu groß werden, es sollte $T < \theta$ gelten. Für $T = 0$ ergibt sich der maximale Debye-Waller-Faktor:

$$f(T = 0) = \exp\left(-\frac{3\hbar^2 \vec{k}^2}{4mk_B\theta}\right)$$

1.5 Isomeriewerschiebung (chemical shift)

Die Coulomb-Energie eines ausgedehnten Kerns mit mittlerem quadratischem Kernradius $\langle r^2 \rangle := \frac{1}{Z_e} \int \rho(\vec{r}) r^2 d^3r$ erfährt gegenüber einem punktförmigen Kern eine kleine Änderung dadurch, dass die Elektronen des s-Orbitals eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kernort besitzen. Diese Korrektur hängt von Kernradius ab und wird durch den Monopolterm

$$E_C = \frac{Ze^2}{6\epsilon_0} |\psi(0)|^2 \langle r^2 \rangle.$$

beschrieben. Beim Mössbauer-Experiment misst man diese Energien relativ zwischen Quelle und Absorber. Nun ändert sich der Kernradius bei einem Kernniveauübergang. Für die bewegte Quelle Q erhält man also für den Übergang vom angeregten Zustand $|a\rangle$ zum Grundzustand $|g\rangle$ unter Berücksichtigung des Dopplereffekts und des Monopolterms E_C

$$\hbar\omega(Q) = \hbar\omega_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) + \frac{Ze^2}{6\epsilon_0} |\psi_Q(0)|^2 (\langle r_a^2 \rangle - \langle r_g^2 \rangle).$$

Dabei ist $|\psi_Q(0)|^2$ die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte eines s-Elektrons am Kernort. Für den ruhenden Beobachter bzw. den ruhenden Absorber A ergibt sich:

$$\hbar\omega(A) = \hbar\omega_0 + \frac{Ze^2}{6\epsilon_0} |\psi_A(0)|^2 (\langle r_a^2 \rangle - \langle r_g^2 \rangle)$$

Resonanzabsorption kann nur auftreten für $\omega(Q) = \omega(A)$. In diesem Fall besitzt die Quelle die Geschwindigkeit:

$$v_{iso} = \frac{Ze^2c}{6\epsilon_0\hbar\omega_0} \left(|\psi_A(0)|^2 - |\psi_Q(0)|^2 \right) (\langle r_a^2 \rangle - \langle r_g^2 \rangle) \quad (1)$$

v_{iso} bezeichnet man als *Isomerieverschiebung* oder *Chemical Shift*. Bewegt sich die Quelle auf den Absorber zu, so ist v_{iso} per Konvention positiv. Ihr Wert hängt von der Bezugssubstanz ab, d.h. v_{iso} ist eine relative Größe.

1.6 Magnetische Dipolwechselwirkung

Die magnetische Dipolwechselwirkung bewirkt eine Niveaufspaltung, d.h. eine Aufhebung der Entartung, und eine Präzession des Kernspins. Legt man das Magnetfeld in z-Richtung an, so gilt:

$$E_{mag} = \langle IM | -\mu_z B_z | IM \rangle = -\gamma B_z \langle IM | I_z | IM \rangle = -\gamma B_z \hbar M$$

Der Energieabstand zwischen benachbarten M-Zuständen beträgt:

$$E_{mag}(M+1) - E_{mag}(M) = -\gamma \hbar B_z = -g\mu B_z$$

Hierbei ist $g = \frac{\gamma \hbar}{\mu}$. Das sich hierdurch ergebende Termschema ist in Abbildung 1 skizziert.

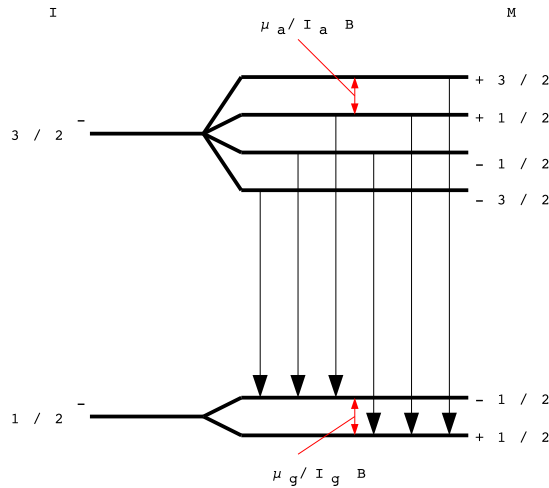


Abbildung 1: ^{57}Fe im externen Magnetfeld. Die Entartung wird aufgehoben und zu einem festen I-Wert sind die verschiedenen M-Werte äquidistant proportional zum angelegten B-Feld aufgespalten. Die Pfeile von links nach rechts entsprechen den 6 Peaks, [1]

Aufgrund der Auswahlregeln für magnetische Dipolübergänge ($\Delta M=0, \pm 1$) sieht man, dass sich die sechs abgebildeten Übergänge ergeben. Für die dazugehörigen Übergangsenergien gilt:

$$\hbar\omega(M_a \rightarrow M_g) = \left(E_a - \frac{\mu_a}{I_a} M_a B \right) - \left(E_g - \frac{\mu_g}{I_g} M_g B \right) = \hbar\omega_0 - \left(\frac{\mu_a}{I_a} M_a - \frac{\mu_g}{I_g} M_g \right) B$$

Hier bezeichnet ω_0 die Frequenz, die dem entarteten Übergang entspricht. Bei bewegter Quelle ergibt sich hieraus dann für die Resonanzgeschwindigkeit

$$v_{res} = -\frac{c}{\hbar\omega_0} \left(\frac{\mu_a}{I_a} M_a - \frac{\mu_g}{I_g} M_g \right). \quad (2)$$

Die sechs möglichen Übergänge können beobachtet werden, wenn die Quelle nicht aufgespalten ist (in Pd eindiffundiertes ^{57}Co) und bei einem Absorber, der eine Aufspaltung liefert (Fe).

1.7 Elektrische Quadrupolwechselwirkung

Besitzt ein Kern ein Quadrupolmoment, übt ein von der Hülle oder vom Kristallgitter herrührender elektrischer Feldgradient eine Kraft aus, welche die $(2I + 1)$ -fache Entartung eines Kernzustandes mit Spin I aufhebt (Zustände $M = -I, \dots, +I$). Diese Aufspaltung kann durch den Mössbauer-Effekt beobachtet werden. Das Experiment liefert das Produkt aus Kern-Quadrupolmoment und Feldgradient.

Für den axialsymmetrischen Feldgradienten gilt

$$E_Q = \frac{3M^2 - I(I + 1)}{4I(2I - 1)} \hbar \omega_Q,$$

wobei $\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar}$ die Quadrupolfrequenz ist mit Q dem Quadrupolmoment und V_{zz} der z-Komponente des elektrischen Feldgradienten.

Der Energieabstand der beiden Mössbauerlinien im Material ^{57}Fe beträgt

$$\Delta E = E_{Q,M=\pm 3/2} - E_{Q,M=\pm 1/2} = 6\hbar\omega_Q = \hbar\omega_0 \frac{\Delta v}{c}.$$

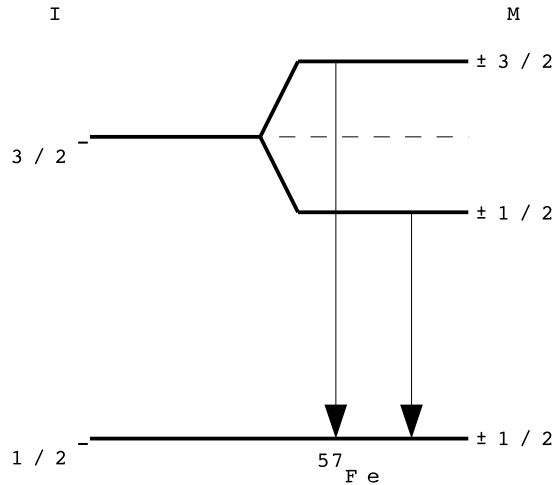


Abbildung 2: Aufhebung der Entartung bzgl. M durch die Quadrupolaufspaltung, aus [1].

Daraus ergibt sich für den Abstand der beiden Mössbauerlinien im Geschwindigkeitsspektrum

$$\Delta v = \frac{ecQV_{zz}}{2\hbar\omega_0}.$$

1.8 Differenzgeschwindigkeit

$$\begin{aligned} \Delta v_{12} &= v_1 - v_2 = \frac{c}{\hbar\omega_0} B \left(\left(M_{a1} \frac{\mu_a}{I_a} - M_{g1} \frac{\mu_g}{I_g} \right) - \left(M_{a2} \frac{\mu_a}{I_a} - M_{g2} \frac{\mu_g}{I_g} \right) \right) \\ &= \frac{c}{\hbar\omega_0} B \left(\mu_a \frac{M_{a1} - M_{a2}}{I_a} - \mu_g \frac{M_{g1} - M_{g2}}{I_g} \right) \end{aligned} \quad (3)$$

2 Versuchsaufbau

Die im Versuch benutzte Versuchsanordnung besteht aus einer beweglichen radioaktiven Quelle, einem Absorber und einem Detektor zum Nachweis der γ -Strahlung. Die Quelle, eine ^{57}Co -Probe

liegt auf einem Schlitten der über ein Steuerelement mit einer einstellbaren Geschwindigkeit periodisch¹ bewegt werden kann.

Die zu messende Probe ist in einer kleinen Plastikkappe als dünne Schicht aufgetragen² und kann vor die Quelle geschraubt werden.

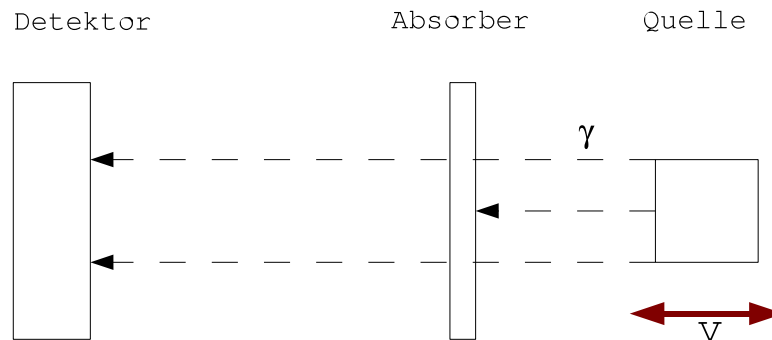


Abbildung 3: Schematischer Aufbau der Mössbauer-Apparatur in Transmissionsgeometrie

Prinzipiell sind zwei verschiedene Anordnungen möglich den Mössbauereffekt zu messen. Bei der in Abb. 3 dargestellten Transmissionsgeometrie, bei der die Schwächung der durchtretenden γ -Strahlung gemessen wird, erhält man eine veringerte Zählrate. In Streugeometrie, bei der man die Fluoreszenzstrahlung nachweist erhält man eine erhöhte Zählrate in der Mössbauer-Resonanz. Bei der Streugeometrie kann man statt der γ -Strahlung auch Konversionselektronen oder Röntgen-Strahlung nachweisen, falls der Mössbauer-Übergang zu einem gewissen Teil konvertiert ist. Die Röntgen-Strahlung entsteht nach Elektroneneinfang durch Auffüllen der Lücken in der Atomhülle. Zum Durchstimmen der Resonanzabsorption bedient man sich des Doppler-Effektes. Dazu bewegt man die Quelle relativ zum Absorber wodurch das Spektrum gezielt zu höheren/niedrigeren Frequenzen verschoben werden kann.

Unsere Messungen wurden in Transmissionsgeometrie durchgeführt.

2.1 Detektoren

Für den Detektor kann im Versuch zwischen zweien gewählt werden.

2.1.1 Szintillationszähler

Beim Durchgang durch einen Szintillationskristall erzeugt ein γ -Quant viele seiner Energie proportionale Lichtblitze, die von einer Photodiode aufgefangen werden. Die resultierenden Photoelektronen werden mit einem Photomultiplier verstärkt und als Strompuls gemessen.

2.1.2 Zählrohr

Ein Zählrohr (Abb. 4) besteht aus zwei Elektroden, die eine ist ein zylindrisches Rohr, die andere eine in dessen Achse aufgespannten Draht. Das Zählrohr ist mit einem Edelgas mit organischem Zusatz gefüllt und mit einem dünnen Berylliumfenster versehen durch das γ -Quanten in das Zählrohr gelangen können. Sie erzeugen dort durch Ionisation der Atome des Füllgases freie Elektronen, deren Gesamtladung seiner abgegebenen Energie proportional ist. In dem angelegten elektrischen Feld wandern die Elektronen auf den Draht zu. Je nach Höhe der am Zählrohr anliegenden Spannung unterscheidet man die Arbeitsbereiche Ionisationskammer, Proportionalzähler und Geigerzähler.

¹Sinus, Dreieck, Sägezahn

²zum Teil in Wachs verknetet

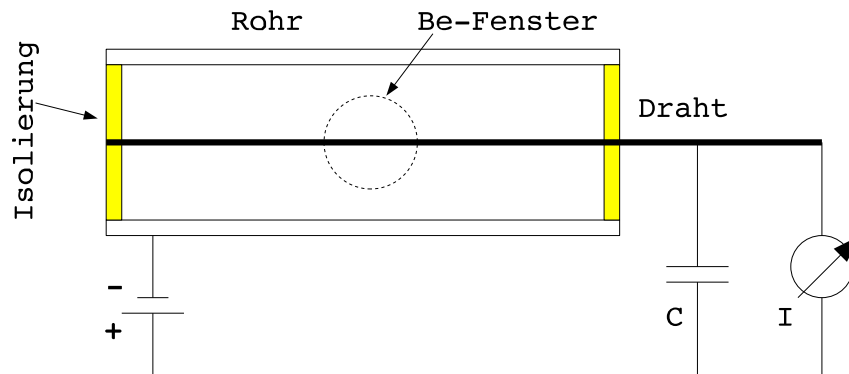


Abbildung 4: Schematischer Aufbau eines Zählrohrs, aus [1]

2.2 Mössbauer-Quelle

Allgemein müssen Mössbauer-Quellen folgenden Kriterien genügen:

1. Die Energie der γ -Strahlung muss zwischen 10 und 150 keV liegen, vorzugsweise bei weniger als 50 keV, zudem werden keine Kernresonanzen für leichtere Isotope als ^{40}K beobachtet.
2. Der γ -Übergang muss in den Grundzustand führen, da umgekehrt die Absorption praktisch nur aus dem Grundzustand eines hinreichend stabilen Isotops erfolgen kann.
3. Die Lebensdauer des ersten angeregten Zustandes sollte zwischen 1 und 100 ns liegen. Ist die Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ zu gross, dann ist die Linienbreite Γ so klein, dass äussere Einflüsse (z.B. thermische Bewegung, äussere Schwingungen) die Resonanzerscheinungen zerstören. Wenn andererseits die Halbwertszeit zu klein ist, wird die Linienbreite so gross, dass die Hyperfeinstruktur überlagert wird.
4. Der Debye-Waller-Faktor darf nicht zu klein sein, d.h. hohe Debye-Temperatur, grosse Atommasse, nicht zu grosse γ -Energie.

Im Versuch verwendeten wir den 14,4 keV-Übergang des ^{57}Fe als Mössbauerquelle, der eine Halbwertszeit von 98 ns hat.

In Abbildung 5 ist das Energieschema der verwendeten Quelle dargestellt. Durch Elektroneneinfang (EC) zerfällt ^{57}Co mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,84% zu ^{57}Fe mit $I = \frac{5}{2}$. Dabei wird ein Elektron aus der K-Schale vom Kern eingefangen. Das in der K-Schale entstandene Loch wird durch energetisch höher gelegene Elektronen wieder gefüllt.

Mit einer Wahrscheinlichkeit von 85% zerfällt das Niveau $I = \frac{5}{2}$ durch Emission eines γ -Quants in das Niveau $I = \frac{3}{2}$, sonst erfolgt ein direkter Übergang in den Grundzustand.

Es gibt zwei Möglichkeiten für den Zerfall des Niveaus $I = \frac{3}{2}$:

1. Der größte Anteil zerfällt durch innere Konversion. Hierbei überträgt der angeregte Kern seine Energie auf ein s-Elektron, da diese eine signifikante Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kernort besitzen. Die herausgeschleuderten Elektronen werden als β -Strahlung registriert. Man spricht von K-Konversion, L-Konversion, usw., je nachdem, aus welcher Elektronenschale die Emission erfolgt.
2. Übergang in den Grundzustand durch Emission eines γ -Quants der Energie 14,4 keV. Dieser Übergang wird von uns als Mössbauerquelle verwendet.

Folgendes Energiespektrum ist also zu erwarten:

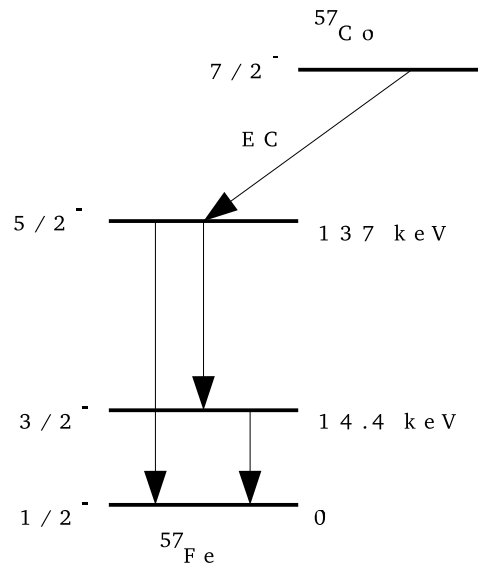


Abbildung 5: Zerfallsschema von ^{57}Co : ^{57}Co zerfällt mit $\tau_{1/2} = 270d$ zu ^{57}Fe , aus [1]

- Röntgenlinien von ^{57}Fe durch Auffüllen des beim ^{57}Co -Zerfalls entstandenen Loches in der K-Schale.
- 135,4 keV- γ -Linien durch den Übergang $I = \frac{5}{2}$ nach $I = \frac{1}{2}$
- 122 keV- γ -Linien durch den Übergang $I = \frac{5}{2}$ nach $I = \frac{3}{2}$
- Röntgenstrahlung durch das Auffüllen des Lochs, das bei der inneren Konversion entstanden ist
- Eventuell charakteristische Röntgenstrahlung des Materials, in dem Mössbauer-Quellen eingebaut sind, falls die Konversionselektronen genügend kinetische Energie haben, um Elektronen aus dem Trägermaterial herauszuschlagen

Die Mössbauerquelle $^{57}\text{Co} \rightarrow ^{57}\text{Fe}$ bietet für viele Anwendungen ideale Verhältnisse. Das Mutterisotop ^{57}Co besitzt mit $T_{1/2} = 270d$ eine hinreichend lange Halbwertszeit, um die Experimente ohne häufiges Wechseln der Quellen durchführen zu können. Die Lebensdauer des Mössbauerniveaus ^{57}Fe , $I = \frac{3}{2}$ von $T_{1/2} = 98 ns$ führt zu einer für viele Anwendungen ausreichenden Linienschärfe, ohne zu grosse Ansprüche an Antrieb und Aufbau zu stellen. Schliesslich ist die Energie mit 14.4 keV klein genug, um auch bei Zimmertemperatur einen großen Debye-Waller-Faktor zu gewährleisten. Eine noch kleinere Energie könnte bereits mit dem beim Elektroneneinfang emittierten Röntgenquant verwechselt werden.

3 Auswertung

3.1 Energiespektren mit verschiedenen Detektoren

Aus dem mit dem Zählrohr aufgenommenen Spektrums wird ein kleines Energiefenster ausgeschnitten, um nur den 14.4 keV Peak als Anregungsenergie für den Mössbauer-Versuch zu erhalten. Je kleiner dieses Fenster gewählt wird, desto schärfer sollten auch die Mössbauer-Peaks werden, allerdings wird dann die Zählrate ebenfalls deutlich geringer.

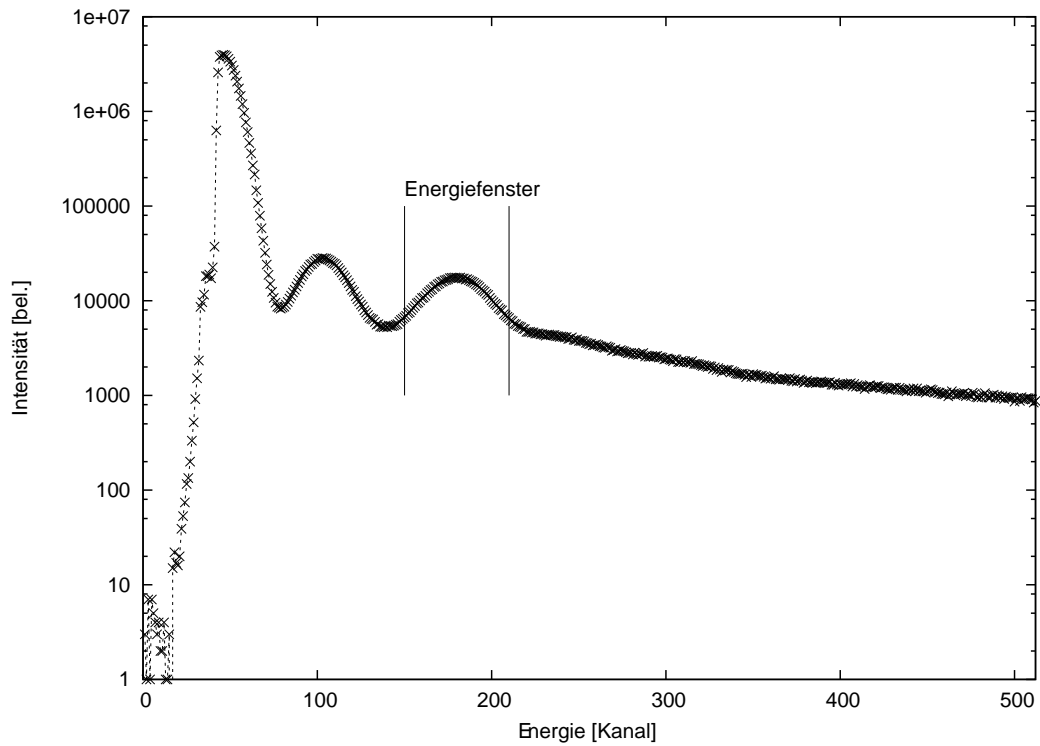


Abbildung 6: Mit dem Gasrohrzähler aufgenommenes Energiespektrum. Das zur Anregung benutzte Energiefenster mit dem 14.4 keV Peak ist mit zwei Linien gekennzeichnet.

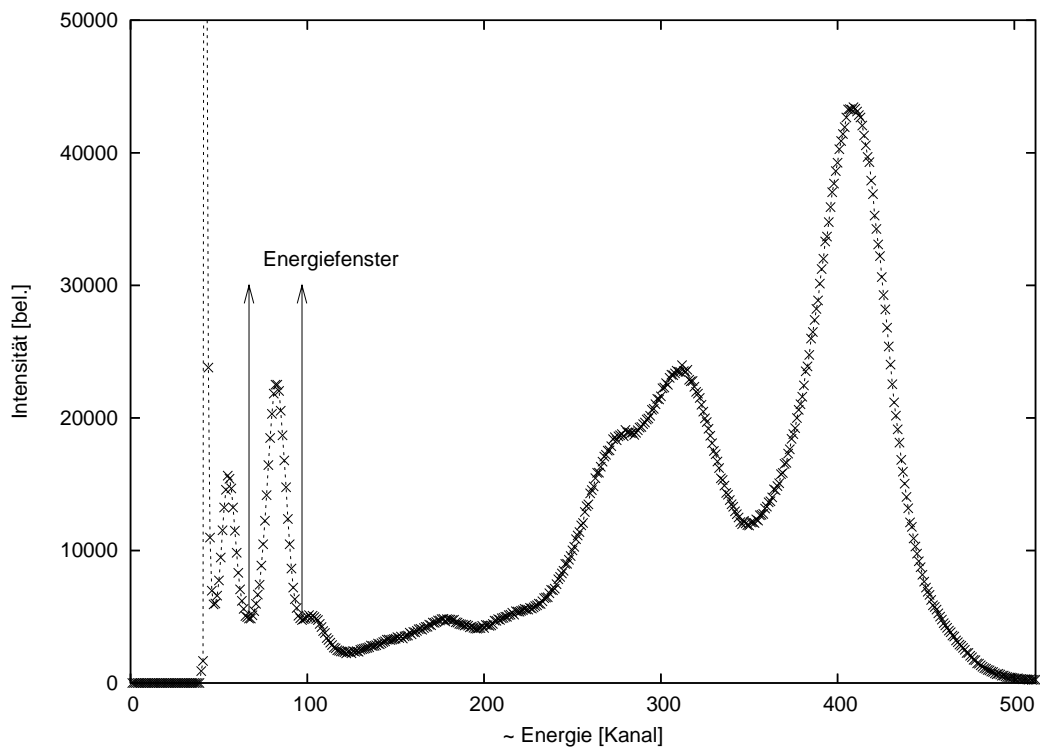


Abbildung 7: Mit dem Szintillationszähler aufgenommenes Energiespektrum.

3.2 Magnetische Wechselwirkung

Über die in 1.8 hergeleitete Formel der Differenzgeschwindigkeiten zwischen je zwei Peaks kann das magnetische Dipolmoment μ_a des angeregten Kerns berechnet werden.

$$\Delta v_{12} = \frac{c}{\hbar\omega_0} B \left(\mu_a \frac{M_{a1} - M_{a2}}{I_a} - \mu_g \frac{M_{g1} - M_{g2}}{I_g} \right)$$

Durch bilden des Verhältnisses $q = \frac{\Delta v_{12}}{\Delta v_{34}}$ zwischen den Differenzgeschwindigkeiten zweier Peak-Paare fällt das Magnetfeld aus der Rechnung heraus und man benötigt lediglich den Wert $\mu_g = 0.0906 \mu_N$ [1] und die entsprechenden Werte der magnetischen Quantenzahlen.

$$\mu_a = 3\mu_g \frac{q(M_{g3} - M_{g4}) - (M_{g1} - M_{g2})}{q(M_{a3} - M_{a4}) - (M_{a1} - M_{a2})} \quad (4)$$

Bei allen 6 Peaks bei Fe_2O_3 und Eisenfolie ist jeweils $I_a = \frac{3}{2}$ und $I_g = \frac{1}{2}$ und folgende Werte für die magnetische Quantenzahl M:

	1	2	3	4
M_a	3/2	-3/2	1/2	-1/2
M_g	1/2	-1/2	1/2	-1/2

Durch erneutes Einsetzen des so berechneten Wertes kann man wiederum das Magnetfeld des Kerns berechnen.

3.2.1 Eisenoxid Fe_2O_3

Aus Schaubild 8 können für die Berechnung der magnetischen Momente die Geschwindigkeitsdifferenzen $v_{12} = 16.87 \pm 0.25 \frac{mm}{s}$ und $v_{34} = 9.76 \pm 0.20 \frac{mm}{s}$ abgelesen werden. Daraus folgt ein Verhältniss $q = \frac{v_{12}}{v_{34}}$ von 1.73 ± 0.40 und damit das magnetische Moment zu $-(0,155 \pm 0.076)\mu_N$. Dabei beträgt das Kernmagnetfeld 59.63 ± 28.7 T und die Linien sind mit einer Isomerieverschiebung von $0.118 \pm 0.181 \frac{mm}{s}$ behaftet. Das Magnetfeld stimmt ungefähr mit den Werten der Literatur [8] 51.3 T überein, die Isomerieverschiebung $0.38 \frac{mm}{s}$ [7] dagegen ist außerhalb des Meßfehlers.

3.2.2 Eisenfolie

Im Plot Abb. 9 kann man die Werte für eine dünne Eisenfolie ablesen und erhält analog zur Berechnung beim Fe_2O_3 folgende Werte: Das magnetische Moment $\mu_a = -0.157 \pm 0.070 \cdot \mu_N$ führt zu einem Kernmagnetfeld B 37.17 ± 21.5 T. In der Literatur findet man die Werte $\mu_a = -0.153\mu_N$ [5] und B 33.3 T [5], die nahe an unseren Werten liegen. Durch den großen Fehler relativiert sich diese Aussage aber.

Es tritt eine Isomerieverschiebung $0.149 \pm 0.152 \frac{mm}{s}$ auf.

3.2.3 Edelmetall

Das mit der Maximalgeschwindigkeit von $10 \frac{mm}{s}$ aufgenommene Edelmetallspektrum Abb. 10 ist keine magnetische Aufspaltung erkennbar.

In der paramagnetischen Legierung Edelmetall finden Relaxationsprozesse wie Spin-Spin- oder Spin-Gitter-Wechselwirkungen statt. In der Zeitskala, auf der die Mössbauerprozesse stattfinden³ treten diese Relaxationsprozesse häufig auf. Dadurch ändert sich allerdings auch ständig die Orientierung, die der Kern in Bezug auf das Magnetfeld durch die s-Elektronen hat. Im Mittel wird die Zeeman-Aufspaltung deshalb aufgehoben.

Es tritt eine Isomerieverschiebung von ungefähr $0.87 \pm 0.37 \frac{mm}{s}$ auf, die sich aber aufgrund der nicht vorhandenen Symmetrie und der Ungenauigkeit des Nullpunkts nur schwer einschätzen läßt. Das zeigt sich auch in der großen Differenz zum Literaturwert von $0.21 \frac{mm}{s}$ [6].

³hierbei geht es um die Größenordnung 100 ns.

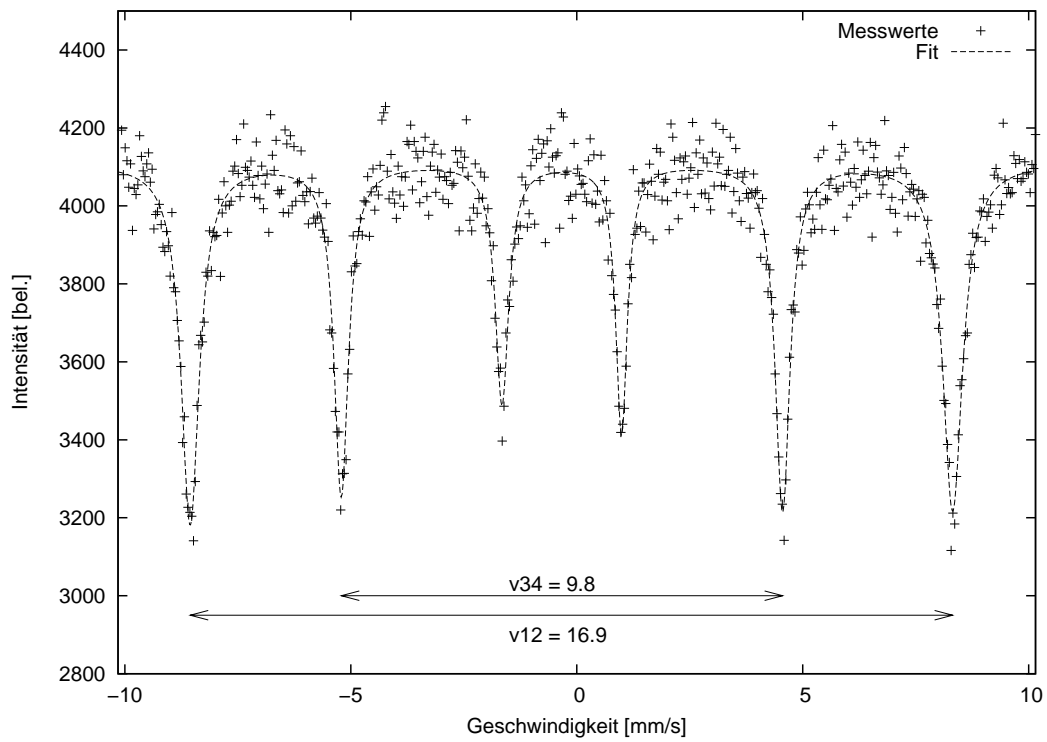


Abbildung 8: Spektrum mit Lorentz-Fit von Fe_2O_3

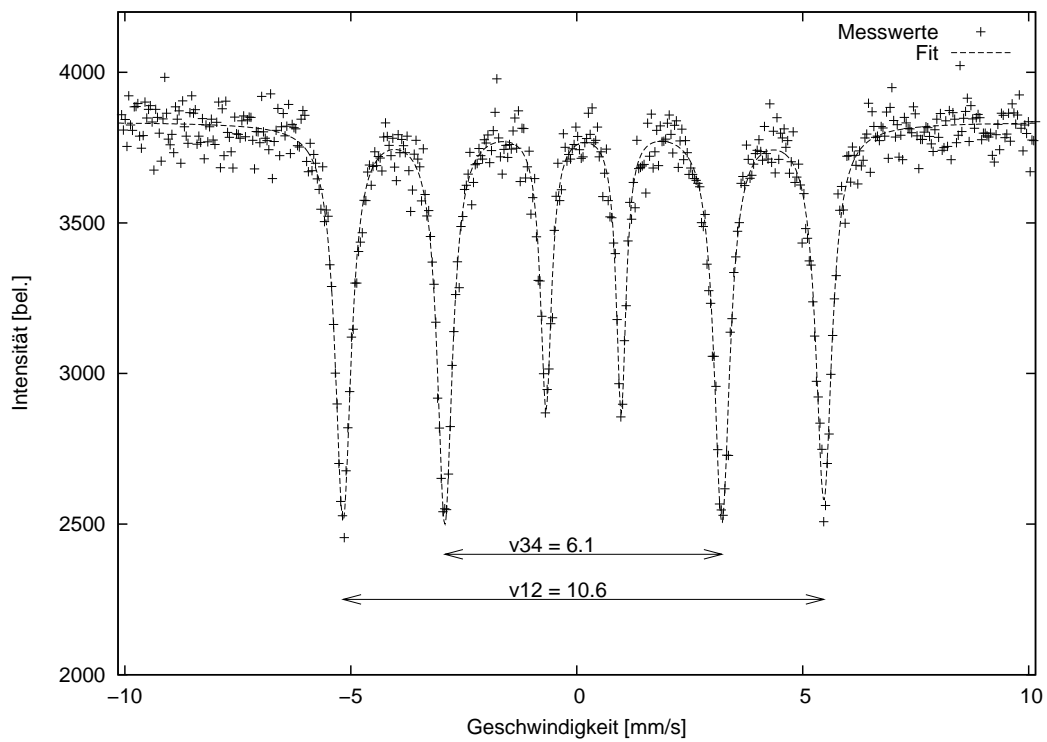


Abbildung 9: Spektrum mit Lorentz-Fit von dünner Eisenfolie

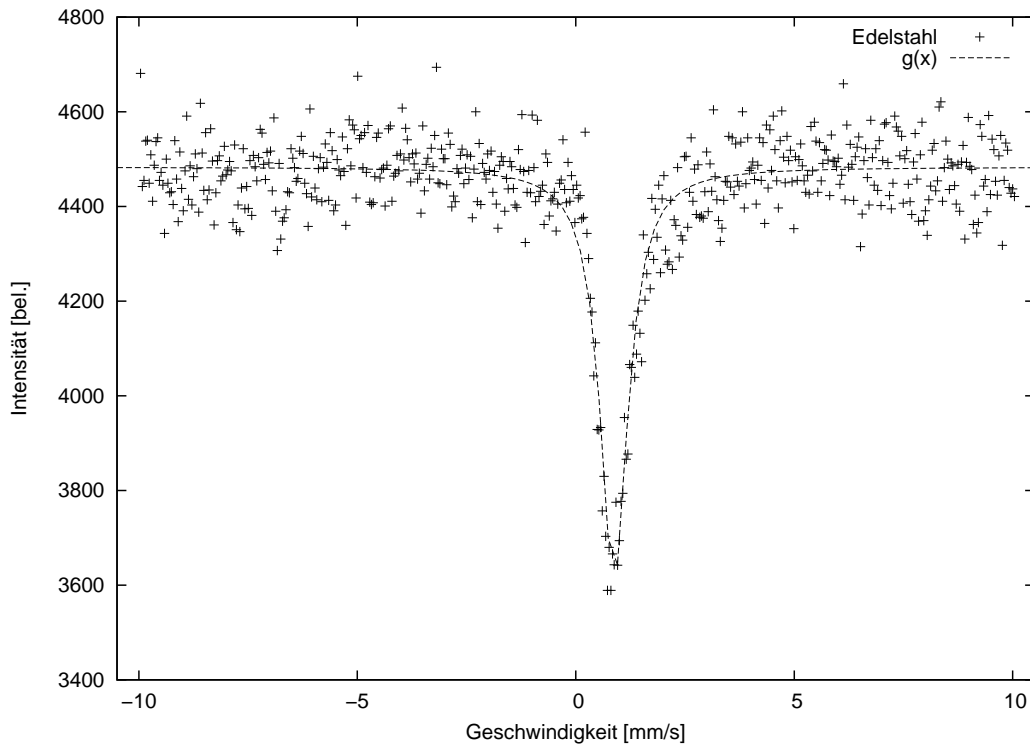


Abbildung 10: Spektrum mit Lorenz-Fit von Edelstahl

3.3 Linienbreite der Spektren

Die natürliche Linienbreite der Peaks ergibt sich aus der Halbwertszeit des angeregten ^{57}Fe von 98 ns und beträgt ungefähr $4.7 \cdot 10^{-9} \text{ eV}$ (aus [1]). Die Linienbreiten sind bei uns deutlich breiter als die natürliche Linienbreite und unterscheiden sich auch innerhalb eines Spektrums. Die zentralen Peaks bei Eisen und Fe_2O_3 haben eine kleinere Linienbreite. Trotzdem sind auch diese noch um ungefähr einen Faktor 4 zu groß. Bei Natriumnitroprussid ist die Linienbreite nur um einen Faktor 2 größer als die natürliche Linienbreite.

In unserem Versuch ergeben sich aus der Halbwertsbreite der Peaks Γ_v in $\frac{\text{mm}}{\text{s}}$ über $\Gamma = E_0 \cdot \frac{\Gamma_v}{c}$ (E_0 14.4 keV) für eine durchschnittliche Linienbreite folgende Werte

Absorber	Eisen	Fe_2O_3	Edelstahl	Nitroprussid	Fe_3O_4
Γ [10^{-9} eV]	20.2 ± 0.3	21.8 ± 0.5	36.5	12.1 ± 0.1	25 ± 4

3.4 Quadrupol-Wechselwirkung in Natriumnitroprussid

Natriumnitroprussid ist ein oktaedrischen Ferrocyanat-Komplex, in dessen Molekül eine Cyan-Gruppe durch eine NO-Gruppe ersetzt wird. Durch den entstehenden einseitigen Ladungsüberschuss wird am Kern ein axialsymmetrischer Feldgradient hervorgerufen. Dieser führt nach [2] zu einer Aufspaltung von $1.705 \frac{\text{mm}}{\text{s}}$.

Aus Schaubild 11 kann über die Geschwindigkeitsdifferenz der beiden Peaks die Quadrupolaufspaltung $\Delta E = 82.0 \pm 8.6 \cdot 10^{-9} \text{ eV}$ von Natriumprussid berechnet werden.

Das Spektrum von Natriumnitroprussid hat eine geringere Intensität als beispielsweise das von Eisen. Weil es nicht angereichert ist und wegen seiner räumlichen Struktur ist die räumliche Dichte des ^{57}Fe im Natriumnitroprussid deutlich geringer als bei den anderen Proben.

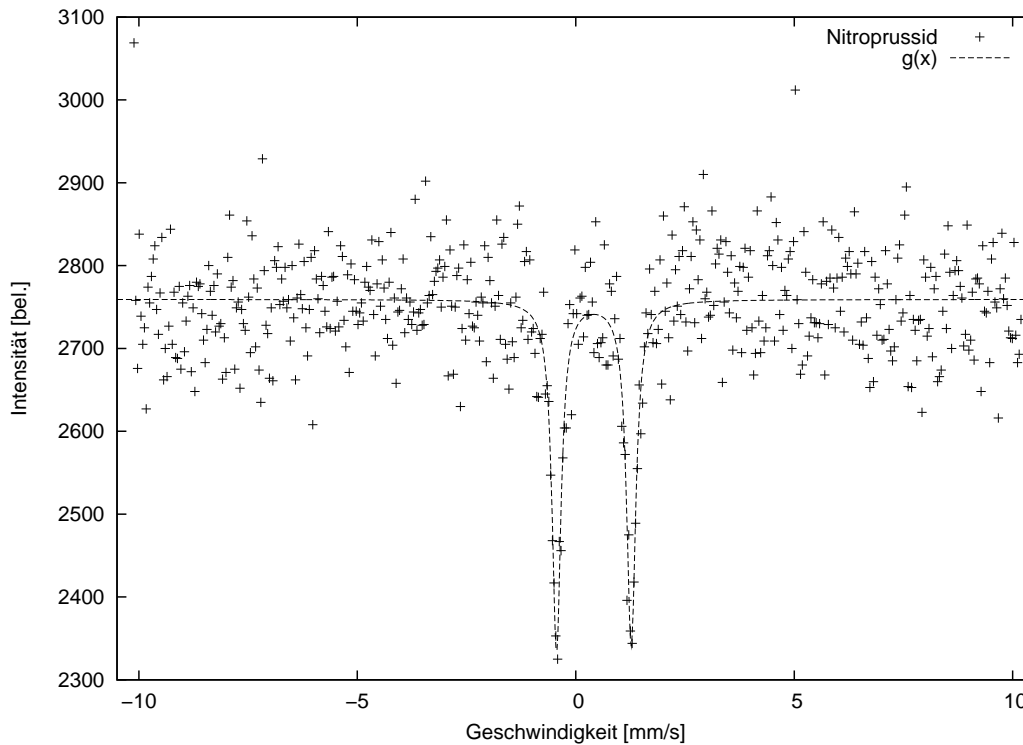


Abbildung 11: Spektrum mit Lorentz-Fit von Natriumnitroprussid

3.5 Isomerieverschiebung bei $FeCl_3$ und $FeCl_2$

Bei $FeCl_3$ ergibt sich aus dem Diagramm 12 eine Isomerieverschiebung von $-0.26 \pm 0.18 \frac{mm}{s}$. Obwohl es nach [2] bei reinem $FeCl_3$ keine Quadrupolaufspaltung gibt, tritt sie in unserem Fall auf. Aus dem Geschwindigkeitsunterschied der beiden Peaks von $0.60 \frac{mm}{s}$ kann die Quadrupolaufspaltung des Moleküls berechnet werden, die deutlich geringer ist als der in [2] angegebene Wert von $0.97 \frac{mm}{s}$. Die Energieaufspaltung beträgt $28.6 \pm 16.9 \cdot 10^{-9} eV$. Aufgrund der stark hygroskopischen Eigenschaften von $FeCl_3$ wird Wasser an das Molekül gebunden und verursacht dadurch eine Quadrupolaufspaltung an dem dadurch entstandenen Komplex $FeCl_3 \cdot 6H_2O$.

Im Gegensatz zu der durch Quadrupolaufspaltung erwarteten zwei Peaks sind in Abbildung 13 mehr Peaks zu erkennen. Es wurde vermutlich die Überlagerung von zwei unterschiedlichen Substanzen aufgezeichnet. Der Wert der Quadrupolaufspaltung und die Position der Peaks 2 und 3 ist gleich wie bei $FeCl_3$ und läßt deshalb den Schluß zu, daß $FeCl_2$ aufgrund seiner Instabilität zerfällt und sich daraus $FeCl_3$ bildet. Zwischen Peak 1 und 4 kann eine Quadrupolaufspaltung von $142.2 \pm 9.0 \cdot 10^{-9} eV$ gemessen werden.

Bei $FeCl_2$ ist die aus dem einzelstehenden linken und dem Peak ganz rechts errechnete Isomerieverschiebung $1.07 \pm 0.14 \frac{mm}{s}$. In [2] wird ein Wert von $1.60 \frac{mm}{s}$ angegeben.

3.6 Fe_3O_4

Bei Fe_3O_4 tritt wie bei Fe_2O_3 eine magnetische Wechselwirkung auf und es läßt sich wiederum ein magnetisches Moment $\mu_a = 0.160 \pm 0.102 \cdot \mu_B$ berechnen. Wie in 3.2 kann daraus wieder das Magnetfeld am Kernort berechnet werden. Es ist 53.2 ± 30.6 T stark, liegt zumindestens im Bereich des Literaturwerts [5] von 48.8 T und ist damit ungefähr so groß wie bei Fe_2O_3 .

Es tritt eine Isomerieverschiebung von $0.33 \pm 0.24 \frac{mm}{s}$ auf die im Verhältniss zu Fe_2O_3 oder Eisenfolie deutlich größer ist.

Im Schaubild 14 sieht man das die beiden rechten Peaks der magnetischen Aufspaltung nochmals

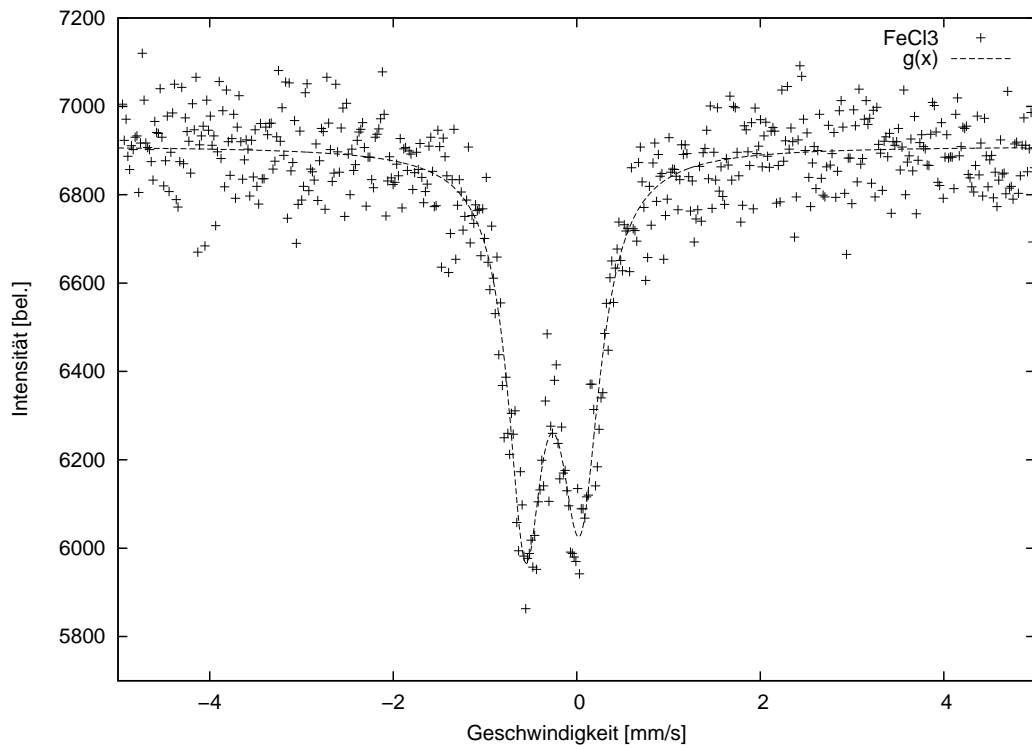


Abbildung 12: Gefittetes Spektrum von $FeCl_3$ mit einer Quadrupolaufspaltung

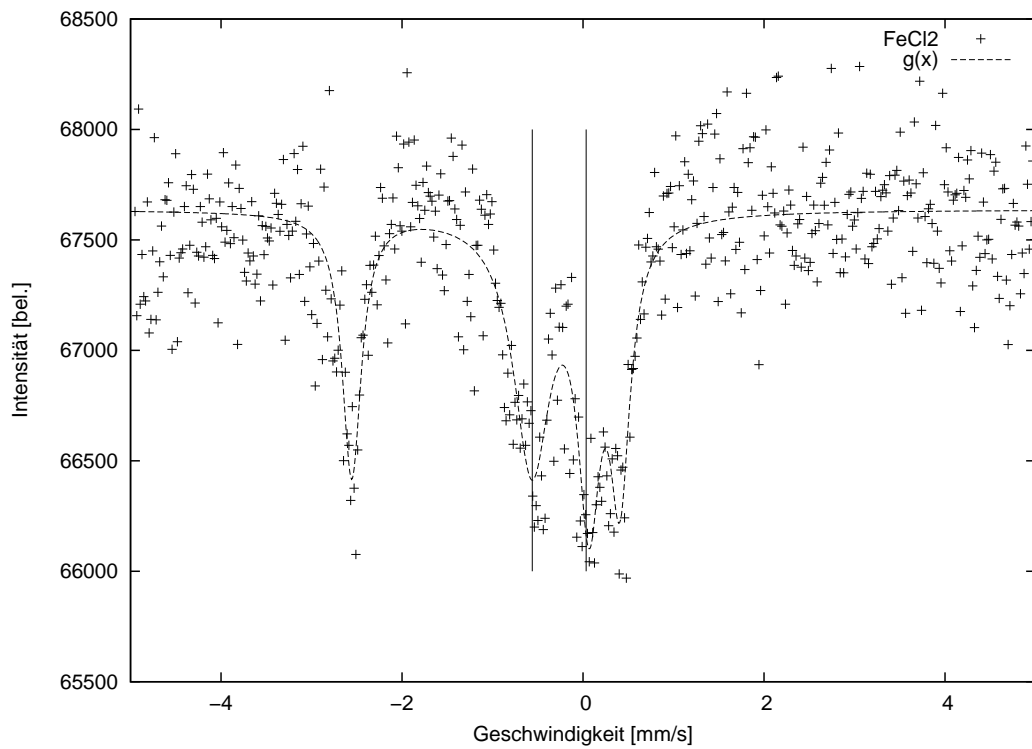


Abbildung 13: Gefittetes Spektrum von $FeCl_2$

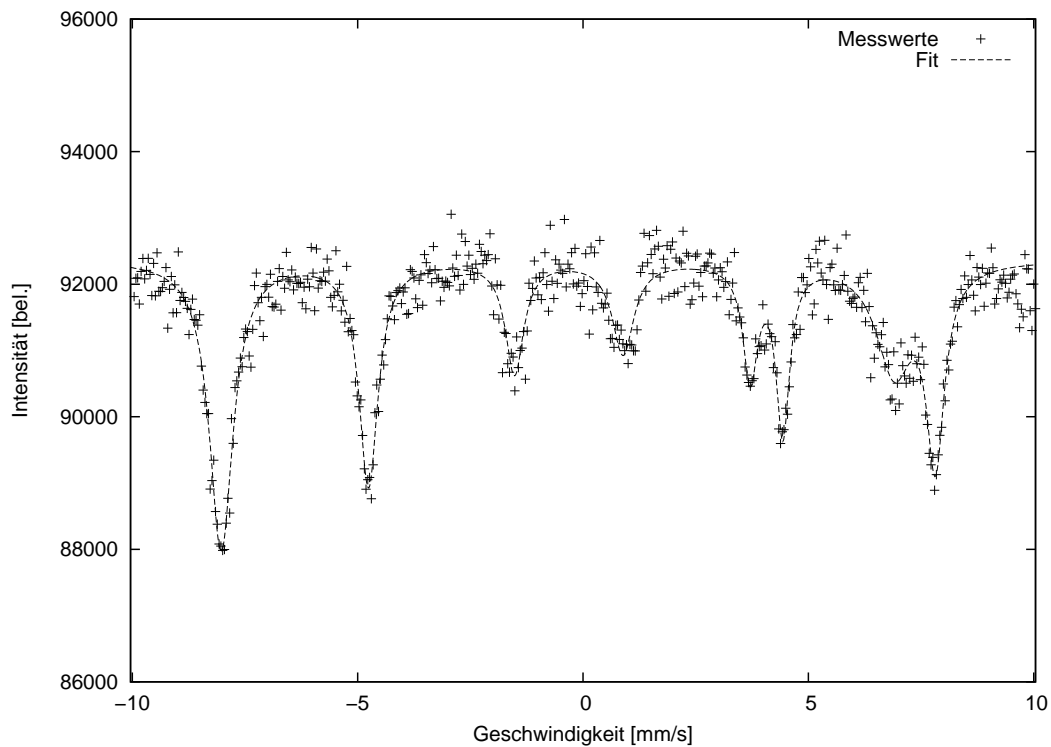


Abbildung 14: Gefittetes Spektrum von Fe_3O_4

aufgespalten sind. Diese Quadrupolaufspaltungen betragen 43 bzw $34 \cdot 10^{-9}eV$ und liegen damit in der Größenordnung der Aufspaltungen bei $FeCl_3$.

4 Fazit

4.1 Probleme

Zum Teil haben wir beim mehrmaligen Messen mit dem selben Absorber verschiedene Spektren bekommen. Einen deutlichen Unterschied gab es bei Fe_2O_3 , wo im zweiten Durchlauf die erwarteten 6 Peaks auftraten, bei der ersten Messung aber eine Asymmetrie zum Geschwindigkeitsnullpunkt auftrat, siehe Abb. 15. Bei $FeCl_3$ das wir über Nacht laufen ließen war am nächsten morgen kein einziger Peak zu sehen. Bei Wiederholung der Messung ergaben sich auch hier Peaks.

Literatur

- [1] G. Schatz, A. Weidinger, *Nukleare Festkörperphysik*, Teubner, Stuttgart 1997
- [2] N.N. Greenwood, T.C. Gibb, *Mössbauer Spectroscopy*, Academic Press, NY 1968
- [3] A. Grimm, M. Bubek, *Comptoneffekt*, FP-Ausarbeitung, KN 2002
- [4] Versuchsordner zum Mössbauereffekt
- [5] H. Wegener, *Der Mössbauereffekt*, BI Hochschultaschenbücher,
- [6] J. Stevens, V. Stevens, *Mössbauer Effect Data Index*, London, 1976

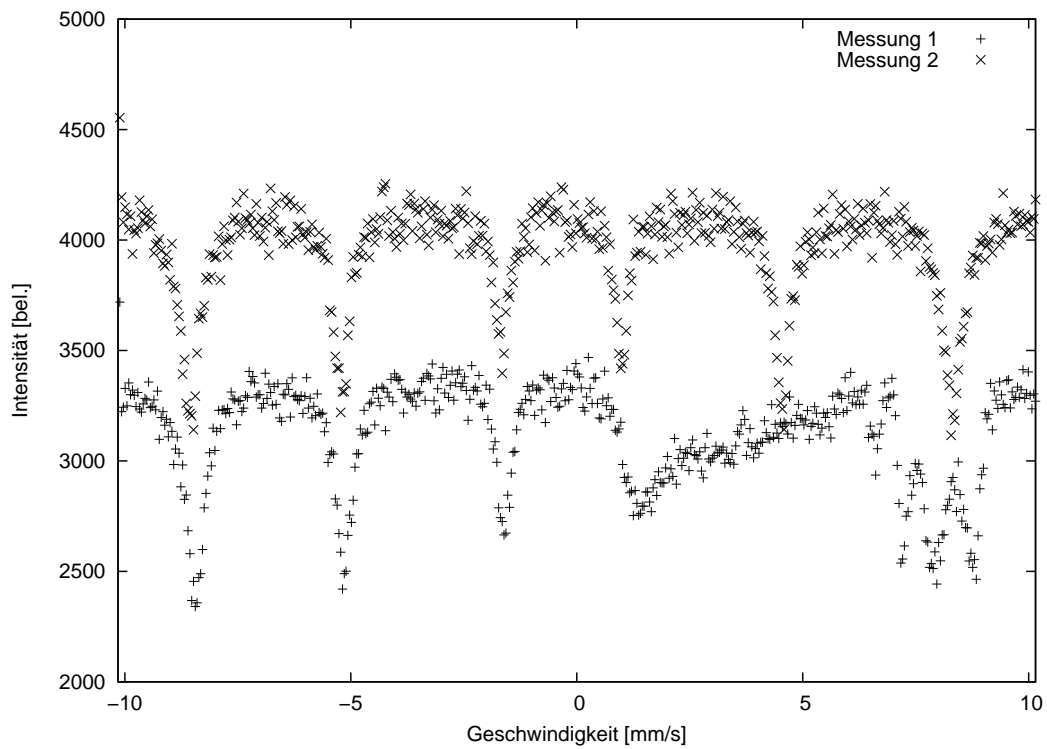


Abbildung 15: Zwei verschiedene Spektren von Fe_2O_3 , die zu unterschiedlichen Zeiten unterschiedliche Ergebnisse liefern.

[7] V. Goldanskii, B. Koller, *Chemical applications of Moessbauer spectroscopy*, Academic Press, New York, 1968

[8] Long, *Moessbauer spectroscopy applied to inorganic chemistry*, che304/n62