

Physikalisches Fortgeschrittenenpraktikum

Mößbauereffekt

– Vorbereitung –

Armin Burgmeier

Robert Schittny

1 Grundlagen

1.1 Absorptions- und Emissionslinien

Emittiert ein angeregter Kern beim Übergang in den Grundzustand ein Photon, so erfährt er aufgrund der Impulserhaltung einen Rückstoß. Das bedeutet, dass nicht die komplette Übergangsenergie E_0 an das Photon übergeben wird. Vielmehr gilt

$$E_\gamma = E_0 - \frac{p_\gamma^2}{2m} \quad (1)$$

mit der Kernmasse m .

Bei der Absorption eines Photons durch einen Kern tritt der gleiche Effekt auf: Zur Impulserhaltung erfährt der Kern wieder einen Rückstoß. Um einen Zustand mit der Übergangsenergie E_0 anzuregen ist daher die Energie

$$E_\gamma = E_0 + \frac{p_\gamma^2}{2m} \quad (2)$$

nötig.

Linienbreiten Wegen der Heisenbergschen Unschärferelation sind die Linien nicht beliebig scharf. Es gilt $\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar$. Je kurzlebiger also ein Zustand ist, desto unschärfer ist die Energieverteilung. Diese Unschärfe wird oft auch mit Γ bezeichnet und (Linien)breite genannt.

Verschiedene Umstände, auf die wir später noch näher eingehen werden, können dazu führen, dass sich eine Emissions- oder Absorptionslinie weiter verbreitert. Die Linienbreite ohne zusätzliche Verbreiterungen wird als *natürliche Linienbreite* bezeichnet.

Resonanzabsorption Man spricht von Resonanzabsorption, wenn ein Kern beim Übergang vom angeregten in den Grundzustand ein Photon abstrahlt welches dann von einem anderen Kern absorbiert wird und dazu führt, dass dieser in den gleichen Zustand übergeht in welchem der erste Kern ursprünglich war. Dies ist nur dann möglich, wenn die Emissions- und Absorptionslinien sich überlappen, die Linienbreite also groß genug ist.

Temperatureinfluss Bei $T = 0$ ist Resonanzabsorption im Bereich des sichtbaren Lichts möglich, im γ -Bereich jedoch ausgeschlossen. Bei höheren Temperaturen bewegen sich die Kerne jedoch thermisch, sie haben einen nichtverschwindenden Impuls p . Bei der Emission eines Photons kommt aufgrund des Dopplereffekts dann noch ein weiterer Term zur Photonenergie hinzu:

$$E_\gamma = E_0 - \frac{p_\gamma^2}{2m} + \frac{p_\gamma p}{m} \cos(\vartheta) \quad (3)$$

Die Emission erfolgt isotrop, ϑ kann also alle Werte zwischen 0 und 2π annehmen. Damit können alle Energien zwischen $-\frac{p_\gamma p}{m}$ und $\frac{p_\gamma p}{m}$ vorkommen, die Linienbreite wird größer. Dies reicht aus, dass bei Kernen wie ^{57}Fe bei Raumtemperatur auch im γ -Bereich Resonanzabsorption auftritt, da sich die Emissions- und Absorptionslinien nun überlappen. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass Resonanzabsorption auftritt hängt vom Überlappintegral der beiden Kurven ab.

1.2 Mößbauereffekt

In einem Kristall können zusätzlich zu den bereits beschriebenen Effekten, die die Energie des γ -Quants gegenüber der Übergangsenergie verschieben noch Phononen der Energie $\Delta E = \hbar\Omega_s$ an- oder abgeregt werden, wobei Ω_s die Frequenz des Phonons bezeichnet. Da ΔE kleiner ist als die natürliche Linienbreite des Übergangs im Kern ergibt sich so ein kontinuierliches Spektrum.

Es werden im Mittel bei Übergängen allerdings mehr Phononen emittiert als absorbiert, sodass das Kontinuum asymmetrisch zur Übergangsenergie liegt. Dies ist der Fall, dass Zustände mit wenig Phononen stärker besetzt sind als solche mit vielen. Im Extremfall, nämlich im Grundzustand, sind gar keine Phononen angeregt sodass bei der Emission überhaupt keine mehr vernichtet werden können. In dem Fall liegt das komplette kontinuierliche Spektrum bei kleineren Energien als die Übergangsenergie, da hier immer noch Energie zur Phononenanregung aufgewendet werden muss. Bei der Absorption ist es umgekehrt, hier muss die Energie des γ -Quants über der Anregungsenergie liegen, damit nach Anregung eines Phonons der Übergang immer noch stattfinden kann.

Der *Mößbauereffekt* bezeichnet nun die Begebenheit, dass es in manchen Kristallen eine nichtverschwindende Wahrscheinlichkeit dafür gibt, dass bei einem Übergang keine Phononen an- oder abgeregt werden. Die Emission bzw. Absorption findet dann statt als wäre der Kristall nichts anderes als ein überdimensionierter Kern. Wegen seiner großen Masse ist die Rückstoßenergie verschwindend klein und die Emissions- und Absorption-

1 Grundlagen

slinie liegen beide im wesentlichen bei der Übergangsenergie. Eine ideale Voraussetzung für Resonanzabsorption.

Man führt nun eine Größe $f(T)$ ein, den sog. *Debye-Waller-Faktor*. f bezeichnet die (temperaturabhängige) Wahrscheinlichkeit dafür, dass bei einer Emission bzw. Absorption wie oben beschrieben kein Rückstoß auftritt. Bei ^{57}Fe ist $f(0) = 0,92$ und $f(\text{Raumtemperatur}) = 0,7$. Dieses Material eignet sich daher besonders zur Untersuchung des Mößbauereffekts.

Experimenteller Nachweis Beim Aufnehmen eines Spektrums müsste sich nun bei genügend hohem $f(T)$ bei der Übergangsenergie ein äußerst scharfer Peak ergeben. Er wird als *Mößbauer-Linie* bezeichnet.

Befinden sich Sender und Empfänger der γ -Quanten in Ruhe, so beobachtet man Resonanzabsorption, was sich in einem Minimum im messbaren Transmissionsgrad niederschlägt. Da die Linie so scharf ist würde eine leichte Energieverschiebung der Photonen die Resonanz aufheben und man würde einen hohen Transmissionsgrad sehen.

Die Breite der Mößbauerlinie ist so schmal, dass sie mit herkömmlichen optischen Methoden oder Halbleiterdetektoren nicht aufgelöst werden kann. Es ist allerdings möglich, sie mit Hilfe des Dopplereffekts zu bestimmen: Bewegt sich der Sender gegen den Empfänger, so kommt es zu einer Energieverschiebung der Photonen. Es gilt

$$\Delta E = \frac{v}{c} E_0 \quad (4)$$

wobei E_0 die Energie des Photons bezeichnet wenn sich der Sender in Ruhe befände.

Es genügt eine Geschwindigkeit von $v_{max} = 0,02 \text{ cm/s}$ um die Resonanzabsorption aufzuheben. Indem man nun möglichst präzise Sendergeschwindigkeiten zwischen $-v_{max}$ und v_{max} wählt kann man durch Bestimmung des Transmissionsgrads die Mößbauerlinie abtasten.

1.3 Aufspaltung und Verschiebung der Linie

Diverse Effekte führen nun zur Aufspaltung oder Verschiebung der Mößbauerlinie. Diese sollen im folgenden untersucht werden.

1.3.1 Hyperfeinstrukturaufspaltung

Durch die Bewegung der Hüllenelektronen haben manche Kerne ein inneres magnetisches Feld am Ort des Kerns. Bei einem nichtverschwindendem Kernspin I ergibt sich somit eine Energie-Aufspaltung $\Delta E = \frac{m\mu_B}{I}$ durch den Zeemaneffekt, mit der magnetischen Quantenzahl m , die Werte zwischen $-I$ und I annehmen kann. Wir können also nicht mehr nur von einem Grundzustand und einem angeregten Zustand ausgehen, sondern es gibt mehrere zu betrachtende Zustände. Jeder führt zu einer eigenen Mößbauerlinie im Spektrum.

Im Versuch werden wir eine sog. *Einlinienquelle* benutzen, die in ein Material eingebettet ist welches kein internes Magnetfeld verursacht. Somit tritt bei der Quelle keine Hyperfeinaufspaltung auf, sondern lediglich beim Absorber.

1 Grundlagen

Die Energie des emittierten Photons ändert sich also nicht zu dem vorherigen Fall. Unter Berücksichtigung des Dopplereffekts gilt mit der Übergangsenergie E_0

$$E_\gamma = E_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) \quad (5)$$

Resonanzabsorption tritt nun genau dann auf, wenn diese der Übergangsenergie am Absorber entspricht:

$$E_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) = E'_0 - \frac{m_a \mu_a B}{I_a} + \frac{m_g \mu_g B}{I_g} \quad (6)$$

Dabei bezeichnen m_a und m_g die magnetische Quantenzahlen des Grund- und angeregten Zustands und μ_a bzw. μ_g die zugehörigen magnetischen Momente. Bei ^{57}Fe , welches wir untersuchen, ist der Kernspin des Grundzustands $I_g = \frac{1}{2}$ und der des angeregten Zustands $I_a = \frac{3}{2}$. Weiter ist $\mu_g = (0,0903 \pm 0,0007) \mu_K$ bekannt, wobei $\mu_K = \frac{e\hbar}{2m_p} = 3,15 \cdot 10^{-14} \text{ MeV/T}$ das Kernmagneton ist.

E'_0 bezeichnet dabei die Übergangsenergie ohne Berücksichtigung der Hyperfeinaufspaltung am Absorber. Für den Moment gilt noch $E_0 = E'_0$, durch einen anderen Effekt wird diese allerdings später noch verschoben sein, weswegen wir sie hier bereits anders bezeichnen. Die Bedingung kann auch nach v umgestellt werden:

$$v^*(m_a, m_g) = \underbrace{\frac{(E'_0 - E_0)c}{E_0}}_I - \underbrace{\frac{\mu_a B c}{I_a E_0}}_A m_a + \underbrace{\frac{\mu_g B c}{I_g E_0}}_G m_g \quad (7)$$

Die Hyperfeinaufspaltung bewirkt also, dass die Resonanzabsorption nicht mehr bei $v = 0$ auftritt, sondern bei mehreren Stellen im Spektrum bei verschiedenen Geschwindigkeiten. Die Auswahlregeln für Dipolstrahlung

$$\Delta m = m_a - m_g \in \{-1; 0; 1\} \quad (8)$$

begrenzen die Anzahl der Resonanzen, in unserem Fall liegen 6 Stück vor.

Wir erhalten also Peaks bei 6 verschiedenen Geschwindigkeiten v^* . Es ist leicht zu sehen, dass

$$\sum_{m_a, m_g} v^* = 6I \quad (9)$$

gilt. Somit lässt sich die sogenannte *Isomerieverschiebung* I leicht aus den Geschwindigkeiten bestimmen und man kann isomeriekorrigierte Geschwindigkeiten v wie folgt definieren:

$$v(m_a, m_g) = v^*(m_a, m_g) - I \quad (10)$$

Ebenso leicht zu sehen ist, dass diese nun symmetrisch liegen, d.h. es gilt

$$v(m_a, m_g) = -v(-m_a, -m_g) \quad (11)$$

1 Grundlagen

Man erhält also drei unterschiedliche Geschwindigkeiten und drei weitere, dem Betrag nach gleiche, negative Geschwindigkeiten. Diese seien mit v_1 , v_2 und v_3 bezeichnet und so gewählt, dass gelte $v_1 > v_2 > v_3$. Man unterscheidet im weiteren vier Fälle. Anhand Gleichung 7 kann man sich klarmachen, dass einer dieser Fälle immer erfüllt ist. Aus der gleichen Gleichung kann man dann A und G , und daraus das Magnetfeld B und das magnetische Moment im angeregten Zustand μ_a bestimmen.

$$\begin{aligned}
 v_1 - 2v_2 - v_3 = 0 &\Rightarrow A = v_1 - v_2 & G = v_3 - v_2 \\
 v_1 - 2v_2 + v_3 = 0 &\Rightarrow A = v_1 - v_2 & G = -v_3 - v_2 \\
 v_1 - v_2 - 2v_3 = 0 &\Rightarrow A = \frac{1}{2}(-v_1 - v_2) & G = v_2 - v_3 \\
 v_1 + 2v_2 + v_3 = 0 &\Rightarrow A = \frac{1}{2}(-v_1 - v_2) & G = -v_1 - v_3
 \end{aligned} \tag{12}$$

1.3.2 Quadrupolaufspaltung

Kerne mit nichtverschwindendem Spin I und einer unsymmetrischen Ladungsverteilung haben ein Quadrupolmoment Q . Es gibt die Anisotropie der Ladungsverteilung bezüglich der Spinrichtung an. In einem elektrischen, räumlich inhomogenem Feld (welches bei einem Atom durch die Hüllenelektronen verursacht wird) kann sich der Quadrupol wegen der Wechselwirkung mit dem Feld ausrichten. Dies führt auch zu einer Energieaufspaltung.

Diese Aufspaltung tritt nur bei $I > 1$ auf, weswegen bei ^{57}Fe nur der angeregte Zustand mit $I = \frac{3}{2}$ aufspaltet. Weiterhin geht in den Energieunterschied nur m^2 ein, daher gibt es nur zwei Aufspaltungen anstatt deren vier. Der Energieunterschied ist bei gegebenem elektrischem Potential ϕ gegeben durch

$$\Delta E_{Q,m=\pm\frac{1}{2}} = -\frac{eQ}{4} \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \tag{13}$$

$$\Delta E_{Q,m=\pm\frac{3}{2}} = +\frac{eQ}{4} \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \tag{14}$$

wobei z die Richtung sei in die der Spin ausgerichtet ist. Der Abstand der beiden Peaks im Geschwindigkeitsspektrum ist dann

$$\Delta v_Q = \Delta v_{Q,m=\pm\frac{3}{2}} - \Delta v_{Q,m=\pm\frac{1}{2}} = \frac{eQ}{2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \frac{c}{E_0} \tag{15}$$

1.3.3 Isomerieverschiebung

Berücksichtigt man, dass ein Kern nicht punktförmig ist, sondern eine ausgedehnte Ladungsverteilung hat, so trägt auch dieser Sachverhalt zur Energie des Kerns bei. Die zusätzliche Energie des Zustands beträgt

$$E = \frac{2\pi}{3} e |\psi(0)|^2 Z e \bar{R}^2 \tag{16}$$

2 Versuchsaufbau und -durchführung

wobei \bar{R} der mittlere Ladungsradius und $\psi(0)$ die elektronische Ortswellenfunktion am Ort des Kerns ist. \bar{R} ist vom Zustand des Kerns abhängig und $\psi(0)$ von seiner chemischen Zusammensetzung.

Eine Verschiebung der Mößbauerlinie tritt nun auf, wenn dieser Betrag für Absorber und Quelle unterschiedlich ist (andererseits würde sich kein Effekt bemerkbar machen, da die zusätzliche Energie die das Photon bei der Emission erhält bei der Absorption wieder verwendet wird um den ursprünglichen Zustand herzustellen).

Dieser Effekt wird als Isomerieverschiebung bezeichnet. Wir haben ihn in Gleichung 6 durch die Zunahme von E'_0 im wesentlichen schon berücksichtigt. Aus obiger Gleichung folgt nun ein expliziter Ausdruck dafür.

$$E'_0 = E_0 + \frac{2\pi}{3} Z e^2 \cdot \left(|\psi_A(0)|^2 - |\psi_Q(0)|^2 \right) \cdot (\bar{R}_a^2 - \bar{R}_g^2) \quad (17)$$

mit den Ortswellenfunktionen ψ_A und ψ_Q von Absorber bzw. Quelle und den mittleren Ladungsradien \bar{R}_a und \bar{R}_g im angeregten bzw. im Grundzustand.

Dies führt dazu, dass die Linien im Geschwindigkeitsspektrum nicht mehr symmetrisch um $v = 0$ liegen. Jedoch kann die Verschiebung bestimmt werden, wenn man zwei Peaks hat von denen man weiß dass sie ohne Isomerieverschiebung symmetrisch liegen würden. Dann entspricht die Mitte dieser beiden Peaks gerade der Verschiebung.

2 Versuchsaufbau und -durchführung

Wie bereits an anderer Stelle angesprochen verwenden wir eine Einlinienquelle als beweglichen Emitter. Die Geschwindigkeit wird von einem Funktionsgenerator periodisch wahlweise dreiecksförmig oder sinusförmig durchfahren. Gemessen wird nun die Transmissionsrate der emittierten Photonen hinter verschiedenen Absorbern. Die Geschwindigkeit der Quelle wird in viele Intervalle eingeteilt und jedem Intervall ein separater Zähler zugeordnet. Der Funktionsgenerator selbst legt fest welcher Zähler gerade aktiv ist, abhängig davon welche Geschwindigkeit er gerade erzeugt.

Die äußerst genaue Bestimmung der Geschwindigkeit erfolgt mithilfe eines Michelson-Interferometers. Dazu spaltet ein Strahlteiler den Laserstrahl eines NeHe-Lasers auf. Die Strahlen werden jeweils an Prismen reflektiert (von denen eines beweglich ist, da mit der Quelle verbunden) und treffen dann auf eine Photodiode und interferieren dort. Die Geschwindigkeit ergibt sich daraus zu

$$v = \frac{\lambda}{2} \frac{N}{BZ} \quad (18)$$

wobei N die Anzahl der Hell-Dunkel-Übergänge ist und BZ die Gesamtzeit in μs in der dieser Geschwindigkeit zugehörige Zählkanal aktiv ist. Diese kann durch die Einstellung der Frequenz am Funktionsgenerator bestimmt werden. Die Wellenlänge eines NeHe-Lasers beträgt $\lambda = 632,8 \text{ nm}$. Zur Kalibration kann anstatt der Hell-Dunkel-Übergänge des Lasers ein 1 MHz-Signal dienen.

Der eigentliche Antrieb funktioniert mit Hilfe zweier Spulen mit Permanentmagneten zweier Spulen. Die Antriebseinheit erzeugt eine Spannung proportional zum aktuellen

Wert des Funktionsgenerators und steuert damit die Antriebsspule an. Die andere Spule bewegt sich mit der Quelle mit. Dort wird daher eine Spannung proportional zur Geschwindigkeit induziert. Diese Spannung wird nach entsprechender Verstärkung mit der Referenzspannung vom Funktionsgenerator verglichen und die Differenz auf die Antriebsspule zurückgekoppelt um die gewünschte Geschwindigkeit zu erreichen bzw. beizubehalten.

2.1 Aufnahme von Spektren verschiedener Materialien und Isomerieverschiebung

Wir nehmen nur durch Durchfahren des Geschwindigkeitsbereichs Mößbauerspektren von verschiedenen Proben auf. Anhand derer können wir dann nach Ablesen der Absorptionspeaks durch Bestimmung von zusammengehörigen Peaks die Isomerieverschiebung bestimmen. Im einzelnen untersuchen wir Eisen, Vacromium, FePO_4 und FeSO_4 .

2.2 Lebensdauer des 14,4 keV-Zustands von Vacromium

Die Lebensdauer τ ist durch

$$\Gamma\tau \geq \hbar \quad (19)$$

gegeben. Wir werden zur Bestimmung Gleichheit annehmen. Wir brauchen nun also lediglich die Breite des Mößbauerpeaks bei 14,4 keV. Dabei ist zu beachten, dass die Halbwertsbreite im Geschwindigkeitsspektrum der doppelten Breite im Energiespektrum entspricht, da die Transmissionskurve im wesentlichen durch den Überlapp zweier (sehr scharfer) Peaks im Energiespektrum entsteht.

2.3 Bestimmung des Magnetfelds, des magnetischen Moments und des Feldgradienten

Diese drei Größen können durch die Hyperfeinstrukturaufspaltung gewonnen werden. Wie in Abschnitt 1.3.1 erläutert erhalten wir durch die Hyperfeinaufspaltung sechs verschiedene Peaks die jeweils noch einmal wegen der Quadrupolaufspaltung doppelt aufgespalten sind.

Die Peaks der Hyperfeinaufspaltung sind dabei wieder in der Mitte der doppelt aufgespaltenen Gradienten-Peaks anzunehmen. Sie liefern 3 isomeriekorrigierte Geschwindigkeiten, die eine der vier Bedingungen in Gleichung 12 erfüllen. Daraus ergeben sich das magnetische Moment des angeregten Zustands μ_a und das innere Magnetfeld B von Eisen.

Der Feldgradient ergibt sich nach Gleichung 15 aus dem Abstand der doppelt aufgespaltenen Quadrupolpeaks. Das Quadrupolmoment Q von ^{57}Fe ist gegeben und es beträgt

$$Q = (0,21 \pm 0,01) \cdot 10^{-28} \text{ m}^2 \quad (20)$$