

# Haladó szintű hallgatói laboratórium

---

## Mössbauer-spektroszkópai mérések

Korecz László és Nagy Dénes Lajos

1993. október

## MÖSSBAUER EFFEKTUS

Korecz László

## 1. Bevezetés

A visszalökődés nélküli magrezonancia fluoreszcencia a lágy gamma-sugárzások tartományában az egyik legérzékenyebb anyagszerkezet kutatási módszer. Segítségével  $10^{-14}$ - $10^{-15}$  pontossággal tudunk relativ energia mérést megvalósítani, így kísérleti úton a természetes vonalszélesség alakját is kimérhetjük. Mivel a mag energianívóit környezeti hatások perturbálják, (ez a magállapotok hiperfinom szerkezete) ezeket a hatásokat - ha közvetett módon is, de - észlelhetjük. Ilyenek pl. elektromos és mágneses tér (külső és belső eredője), az elektronhéjak jellegzetessége (tehát a kémiai kötések, ill. térbeli felépítésük) hőmérséklet, gravitációs tér, stb.

## 1.1 Történelmi előzmények (atomi rezonancia)

Talán legrégebben az optikai spektroszkópiában vált ismertté a rezonancia abszorpció jelensége. Ha egy atom az  $E_2$  energiájú gerjesztett szintről az  $E_1$  szintre kerül ( $E_2 > E_1$ ) fényt (fotont) bocsát ki. A felszabaduló  $E_e$  ( $E_e = E_2 - E_1$ ) energia két részre oszlik meg. Egyik részét elviszi a foton ( $E_f$ ) a másik részét az impulzusmegmaradás miatt az atom veszi fel, mint mozgási (visszalökődési) energiát ( $E_v$ ). (A megértéséhez az 5.1 és 5.2 ábrák segítenek). Így:

$$E_e = E_f + E_v$$

Vagyis:

$$E_f = E_e - E_v$$

Mivel az impulzus:

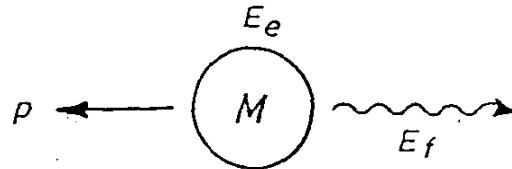
$$p = \frac{E_e}{c} \quad \text{de: } E_v = \frac{p^2}{2M} \quad \text{ezért } E_v = \frac{E_e^2}{2Mc^2}$$

$$E_f = E_e - \frac{E_e^2}{2Mc^2} = E_e - R$$

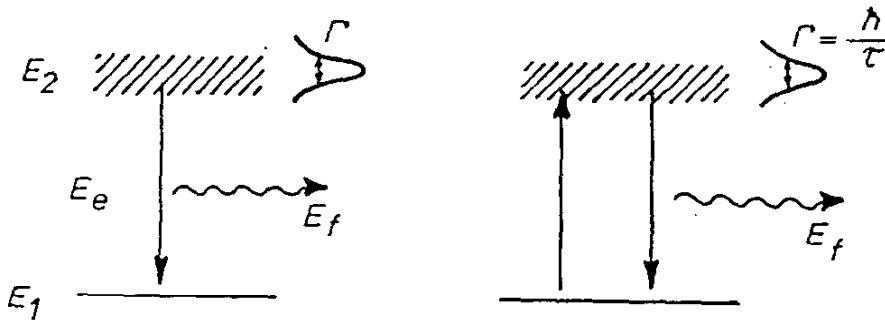
A foton  $E_e$ -nek a visszalökődési energiával csökkent maradványát viszi el.

Egy hasonló atom gerjesztéséhez viszont (az előbb említett impulzusmegmaradási törvény miatt) nem elegendő az  $E_e$  energia, hanem:

$$E'_f = E_e + \frac{E_e^2}{2Mc^2} = E_e + R \quad (4)$$



5.1 ábra  
Emisszió és visszalökődés



5.2 ábra  
Rezonancia abszorpció és szórás

energia szükséges. Ha a vizsgált objektum átlagosan  $\tau$  ideig gerjesztett állapotban van, akkor a nivó energia félértékszélessége  $\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}$ . Így a rezonancia feltétele ( $R = E_e^2/2Mc^2$  jelöléssel) esetünkben az, hogy

$$2R < \Gamma \quad (5)$$

Optikai spektroszkópiában, ahol  $\Gamma \sim 10^{-6}$  eV és  $R \sim 10^{-7}$  ( $10^{-8}$ ) eV a rezonancia jelensége természetesen mindig megmutatkozik. Mérésekben a  $\Gamma$  (természetes) vonalszélességet ritkán, csak speciális esetekben tapasztalhatjuk.

Egyik jelenség, amelyik  $\Gamma$ -t elkeni, az a hőmérsékleti Doppler kiszélesedés, amelyet  $\Delta$ -vel jelölünk. Ugyanis a hőmozgás az atomoknak bizonyos sebességet ( $v$ ) ad különféle ( $\mathcal{D}$ ) irányokba. Az energiaváltozás szögfüggését a következő összefüggés adja:

$$E' - E = E \frac{v}{c} \cos \vartheta \quad (6)$$

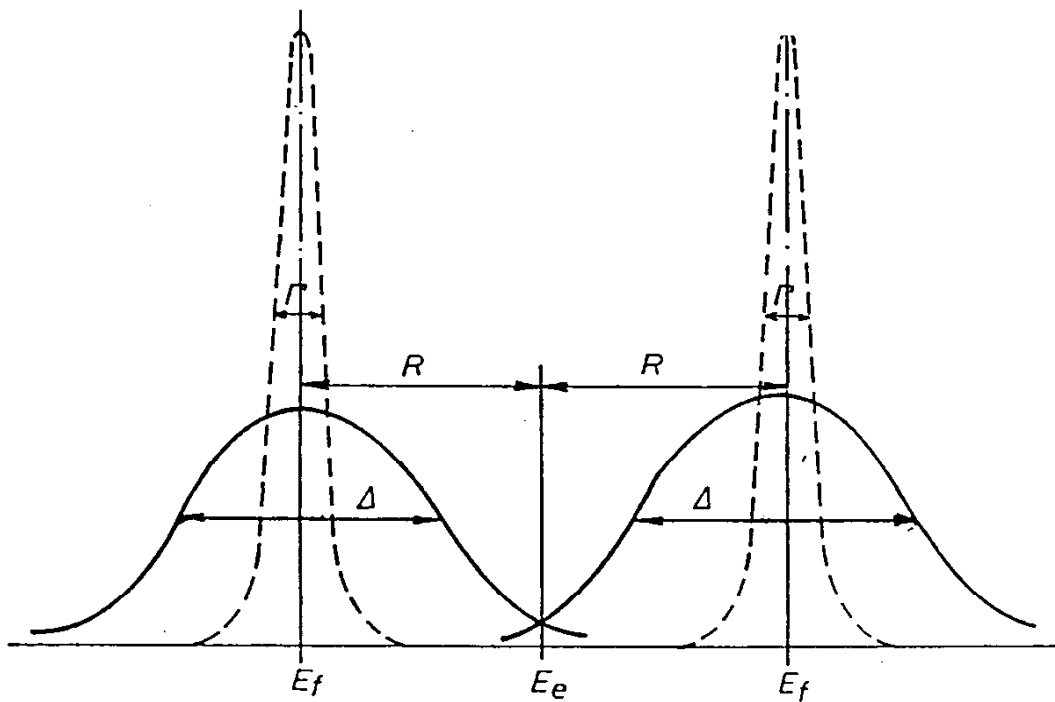
Statisztikus átlagot képezve megkapjuk a  $\Delta$  értéket.  
 Kristályos anyagra a Doppler kiszélesedés az alábbi:

$$\Delta = E \left( \frac{2kT_{\text{eff}}}{Mc^2} \right)^{1/2} \quad (7)$$

Itt:

$$T_{\text{eff}} = f(T/\Theta)$$

ahol  $T$  az abszolút hőmérséklet és  $\Theta$ : a kristály Debye hőmérséklete.  $\Delta$  jellemző értéke a  $10^{-3} - 10^{-2}$  eV.



5.3 ábra

Emittált energia és az abszorpciós energiaszükséglet természetes vonalszélesség és hőmérsékleti kiszélesedés esetében. (Az arányuk erősen torzítottak).

## 2. Magrezonancia

Magfizikában a rezonancia fluoreszcencia jelenségét az előzőekben említettek ellenére sokáig nem tudták kísérletileg kimutatni. Ennek oka pedig igen egyszerűen magyarázható:

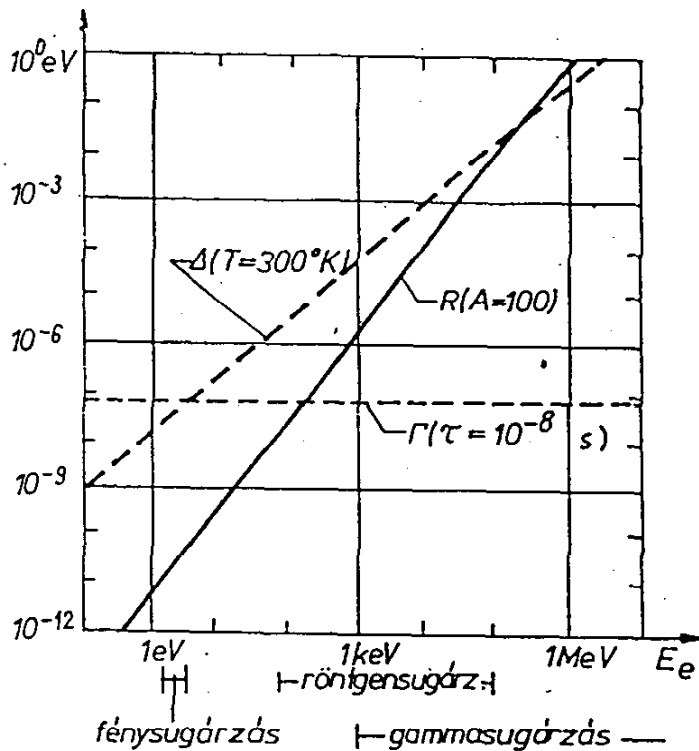
Ugyanis a magnivók gerjesztési folyamataiban az  $R$  jóval nagyobb ( $R \sim 10^{-2} - 10^2$  eV), mint az atomi nivóknál. Ezért ezekben az esetekben az 5.3 ábrán látható energiaviszonyok alakulnak ki.

Az eddig megtárgyalt eseteket foglalja össze szemléletes módon az 5.4 ábra. Ebbe az ábrába belerajzoltunk olyan egyeneseket is, amelyek bizonyos átlagértékeket képviselnek. ( $A = 100$ ,  $\Gamma = -10^{-8}$  s és  $T = 300^\circ\text{K}$ .) Az ábrázolt viszonyok jól mutatják, hogy az optikai tartományban miért van és a gamma tartományban miért nincsen rezonancia fluoreszcencia.

1951-ben P.B.Moon a  $^{198}\text{Hg}$  izotóppal sikeres magrezonancia abszorpciót hozott létre. módszerének lényege az volt, hogy a hiányzó  $2R$  energiát Doppler effektussal (nagysebességű mozgás ultracentrifugával) pótolta

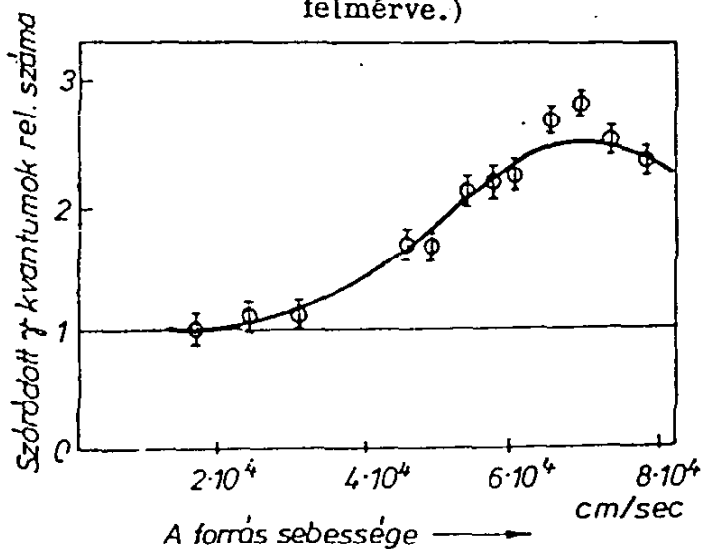
$$(2R \lesssim E \frac{v^2}{2c^2}).$$

Megfelelő sebesség elérésekor az abszorpció erősen megnőtt. Kísérleti okokból a szórt fotonokat lehetett egyszerűbben mérni. (5.5 ábra)



5.4 ábra

A rezonancia fluoreszcencia feltételei az  $E_e$  függvényében (Az ordinátán a hőmérsékleti kiszélesedésnek a visszalökődésnek megfelelő energia és egy  $10^{-8}$  sec élettartamhoz tartozó energia van rendre felmérve.)



5.5 ábra

P.B.Monn kísérletének eredménye

Malmörs ugyanebben az évben egy másik módszert alkalmazott. A hőmérséklet emelésével (növelve így a  $\Delta-t$ ) növelte azon fotonok számát, amelyeknek már elegendő az energiája a rezonancia abszorpcióhoz. Szemléletes képen (5.3 ábra) ugyanis a hőmérséklet változtatásával az esetleges átlapolás mértéke természetesen megváltozik.

### 3. A Mössbauer jelenség

R.L. Mössbauer 1958-ban szintén az előbb említett kísérletet végezte az  $^{191}\text{Ir}$ -es izotóp 129 keV-es vonalával (szombahőmérsékleten van egy kis átlapolás). Azt tapasztalta, hogy teljes ellentmondásban a várttal, ha csökkentette a hőmérsékletet, a rezonancia abszorpció megnövekedett. Az észlelt jelenség oka az ún. Mössbauer effektus, amelynek lényege az, hogy: a kristályban kötött magok csökkenő hőmérséklettel növekvő hányada olyan, hogy természetes vonalszélességű és visszalökődésmentes abszorpcióra és emisszióra képes. Így létrejöhet a már említett rezonancia fluoreszcencia.

#### 3.1 Klasszikus magyarázat

Adhatunk egy igen egyszerű magyarázatot erre a jelenségre. Ugyanis a (2)-es képletbe nem az éppen abszorbeáló vagy emittáló mag  $M$  tömegét kell írunk, hanem az egész kristályét, míg a mag "szilárdan van rögzítve benne". Ekkor látható, hogy  $R$  elhanyagolhatóvá válik és  $E_f \sim E_e$  ((3) képlet) lesz. Természetesen ez a kép semmilyen magyarázatot nem ad arra, hogy a magoknak miért csak néhány százaléka nem lökődik vissza és ugyanakkor természetes vonalszélességű is marad. Ezen kívül a hőmérsékletfüggés sem érthető meg a segítségével.

#### 3.2 Kvantummechanikai kép

A kristályban kötött magok szabályos rács elrendeződésűek és rezegnek egyensúlyi helyzetük körül. A rezgési frekvenciák eloszlását, a kristály rezgési spektrumát a kötések módja és jellege határozza meg. Szilárd testek rácsrezgéseit oszcillátorok rendszerével helyettesíthetjük. Ismeretes, hogy egy  $\nu$  frekvenciájú oszcillátor energiája  $h\nu$ , és ennek csak egész-számu többszörösét (un. fononokat) veheti fel, vagy adhatja le az illető kristály. A rezgési spektrum felső határfrekvenciája  $\nu_m$ , amivel a következő módon értelmezzük a  $\Theta$  karakterisztikus (vagy Debye) hőmérsékletet:

$$h\nu_m = k\Theta \quad (8)$$

A fonon spektrum jellegéből az következik, hogy a nagyobb frekvencia-  
ju rezgési állapotoknak nagyobb a sűrűsége. (Emlékeztetésül: az Ein-  
stein féle fononspektrumban pl. csak egy  $\nu$  frekvencia szerepel, ami éppen  
a  $\nu_m$ ). Viszont ha R kicsiny, pl.

$$R < k \Theta, \quad (9)$$

akkor az Einstein-féle képből nem elég a fonongerjesztéshez. A valóságos  
fononspektrum esetében viszont csak annyit mondhatunk, hogy az átlagos  
energialeadás R, és ez a nagyobb fononenergia gerjesztéséhez szintén nem  
elegendő. Így lesznek olyan emissziós illetve abszorpciós folyamatok is,  
amelyeknél nem történik fonongerjesztés.

Kvantummechanikai számításokkal pontosabban követni tudjuk a fenti gon-  
dolatmenetet. (A részleteket l. 6. irodalom.)

Kvantum elektrodinamikából tudjuk, hogy a foton abszorpció valószínű-  
sége (ha a foton impulzusa:  $\hbar k$ ):

$$W_Q \sim \left| e^{-ikx_0} \langle \Psi_G(x) | e^{-ikx} | \Psi_A(x) \rangle \right|^2 \quad (10)$$

(Ahol  $x_0$  a kristály egyensúlyi rácspontjának a helye és  $x$  az atommag  
kimozdulásának nagysága az egyensúlyi helyzettől,  $\Psi_G$  a fononok gerjesztett  
és  $\Psi_A$  a fononok alapállapota.) Ha felhasználjuk a kvantummechanika ismert  
azonosságait<sup>6)</sup>, a

$$\Psi(\underline{p} + \hbar \underline{k}) = e^{-ikx} \Psi(\underline{p}) \quad \text{és} \quad x = i\hbar \frac{d}{dp}$$

összefüggéseket és a változatlan (nem gerjesztett) részt vizsgáljuk, akkor  
megkapjuk a gerjesztés nélküli abszorpció valószínűségét:

$$W_Q \sim \left| \langle \Psi_A(x) | e^{-ikx} | \Psi_A(x) \rangle \right|^2 = \left| \langle \Psi_A(\underline{p}) | \Psi_A(\underline{p} + \hbar \underline{k}) \rangle \right|^2 \quad (11)$$

Mivel az impulzus bizonytalansága  $\Delta p = \frac{\hbar}{x}$ , a (11) akkor lesz 0-  
tól különböző, ha  $\hbar k \ll \Delta p$ , vagyis  $k \cdot x \ll 1$ . Más szavakkal: az ef-  
fektus akkor válik észrevehetővé, ha kicsi a  $\gamma^*$  sugárzás energiája, mert  
így  $k$  is kicsi - valamint - ha T alacsony ( $\Theta$ -nál jóval alacsonyabb), mert  
akkor  $x$  is kicsi. Hasonló következtetésre juthatunk, a (2) és (9) összetevé-  
séből is.

A (11)-es összefüggésből kiindulva egy egyszerű esetben (Einstein-féle fononspektrum és  $T = 0^\circ\text{K}$  kezdőérték) megkapjuk a tényleges végeredményt is:<sup>6)</sup>

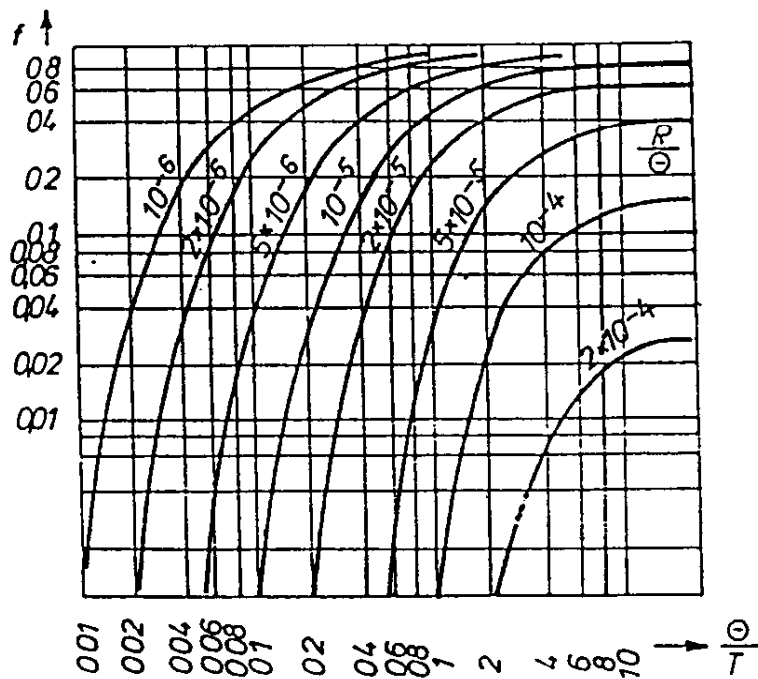
$$W_Q \sim \left(1 - \frac{1}{2} k^2 \langle x^2 \rangle_T\right)^2 \quad (12)$$

(Itt az indexben lévő  $T$  azt jelenti, hogy az összefüggés igaz nem csak a  $T = 0^\circ\text{K}$  hőmérsékletre is.)

Ebből az látszik, hogy a  $W_Q$  - vagyis a visszalökésmentes foton abszorpció valószínűsége - akkor nagy, ha a  $k^2 \langle x^2 \rangle$  szorzat értéke kicsi. Ezt kaptuk az előző általános eset vizsgálatánál is.

Ha jól átgondoljuk az előzőeket, akkor világossá válik, hogy azoknál az atommagoknál, amelyeknél a Mössbauer (fonongerjesztés mentes abszorpció és emisszió) effektus fellép, ott a hőmérséklet sem okozhat kiszélesedést, hiszen ennél a magnál nem történik semmiféle fonongerjesztés.

Az eredményeket az 5.6 ábrán foglaltuk össze. Vas esetében ( $R \sim 10$ - $12$  eV,  $\Theta \sim 600^\circ\text{K}$ ) szobahőmérsékleten ( $T = 300^\circ\text{C}$ ) látszik, hogy az effektus nagysága elérheti a 80 %-ot is.



5.6 ábra

A Mössbauer effektus nagyságának ( $f$ ) függése a visszalökési energiától ( $R$ ), a hőmérséklettől ( $T$ ) és a Debye ( $\Theta$ ) hőmérséklettől <sup>57</sup> Fe izotóp esetében. (A görbék paramétere  $R/k\Theta$   $k=1$  egységekben)



## 4. A Mössbauer spektrum jellemzői és információtartalma

A spektrum felvétele úgy történik, hogy a forrást az abszorbenshez képest mozgatjuk és a sebesség változtatásával mintegy végigpásztázzuk a bennünket érdeklő energiaskálát. Így a két vonal (a forrás és abszorbens, emissziós és abszorpciós vonalai) eredőjét fogjuk megkapni. Ha nagyon vékony fóliákkal dolgozunk, akkor a félértékszélesség kb. a  $2\Gamma$  lesz.

### 4.1 A spektrum szerkezete

A Mössbauer spektrumok felvételénél rendkívül nagy pontosságú relativ energiamérést végzünk. Ezért a spektrumban minden olyan változást észrevehetünk, ami a felbontóképességnél nagyobb perturbációt okoz valamelyik energia nivóban. Így pl. felhasadást okoz a mag mágneses momentumának a mágneses, a kvadrupolus momentumának az elektromos térrel való kölcsönhatása: eltolódást okoz a mag Coulomb kölcsönhatása az elektronfelhőjével, az eltérő gravitációs tér és hőmérséklet, stb.

Ha csak egy vonalat mértünk ki, akkor is alaposan meg kell vizsgálni a vonal alakját, mert lehetséges, hogy több igen közel-, vagy egybeeső vonal eredőjét kaptuk.

### 4.2 A kapható információk

A fő problémát az jelenti, hogy ismerve a mag elektronfelhőjét és a kristályszerkezetet ki tudjuk számolni a várható spektrumot, de a spektrumból általában nem tudjuk egyértelműen visszaszámolni a ható tereket.

Ez azért van így, mert ugyanazt a változást több különböző (vagy együttesen ható) tér elő tudja idézni. Ilyenkor mesterséges terekkel, modellezéssel, vagy kiegészítő mérésekkel tehetjük egyértelművé az eredményeket.

#### 4.2.1 Vonall helyének megváltozása

##### a) Izomér (kémia) eltolódás:

A mag energiaszintjeit kissé módosítja a magnak az elektronfelhővel való elektrosztatikus kölcsönhatása. Két eltérő vegyületben vagy kristályszerkezetben - az elektronfelhő kissé más, így az s elektronsűrűség is a mag helyén kissé megváltozik - ez a kölcsönhatás különböző. Ennek következtében a két vegyület Mössbauer spektruma egymáshoz képest eltolódik. Az irodalomban található részletes számolást mellőzve, az eredmény az alábbi:<sup>5)</sup>

$$\Delta E \approx Ze^2 \left( |\psi_S(0)|_A^2 - |\psi_S(0)|_F^2 \right) (\langle r^2 \rangle_G - \langle r^2 \rangle_A) \quad (13)$$

Itt: Z: a mag töltése

e: az elektrontöltés

$\Psi_S(0)$ : az elektronsűrűség a mag helyén az abszorbensben és a forrásban.

$\langle r^2 \rangle$ : magsugárnégyzet átlagos értéke gerjesztett és alapállapotban.

(13)-ból látható, hogy a mag helyén lévő elektronsűrűségétől (s elektron) függ az energia (itt izomér) eltolódás, de ezt viszont a teljes elektron-szerkezet határozza meg. Így az utóbbira következtetni lehet.

A fentiek magyarázatot adnak arra is, miért lehetnek különbözőek az eltérő hordozóanyagú Mössbauer sugárforrások, bár az izotóp bennük azonos.

b) Egyéb eltolódások, pl. gravitációs, hőmérsékleti stb. hatások miatt.

#### 4.2.2 Vonalfelhasadás 3), 5)

a) Quadropólusfelhasadás:

Ha az atommag Q kvadropólus nyomatékára  $\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$  elektromos térgradiens hat, akkor

$$\Delta E = \frac{eQ}{4I(2I-1)} \cdot \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \left[ 3m_I^2 - I(I+1) \right] \left( 1 + \frac{\eta^2}{3} \right)^{1/2} \quad (14)$$

energiával tolódik el a magnívó.

Itt: I: a magnívó spinje

$m_I$ : a mágneses kvantumszám

$\eta$ : aszimmetria faktor, axiális szimmetriánál ez 0.

Jellemzője, hogy a vas esetében egy nívót két részre hasít fel.

A  $\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$  -et elsősorban az elektronszerkezet szimmetriája (gömbszim-

metriától való eltérése) határozza meg. Ez ismét egy információ az elektronszerkezetre.

b) Mágneses felhasadás:

A mágneses tér energia-módosító hatása, mint tudjuk az alábbi:

$$\Delta E = g \mu H m_I \quad (15)$$

Itt  $g$ : giromágneses együttható

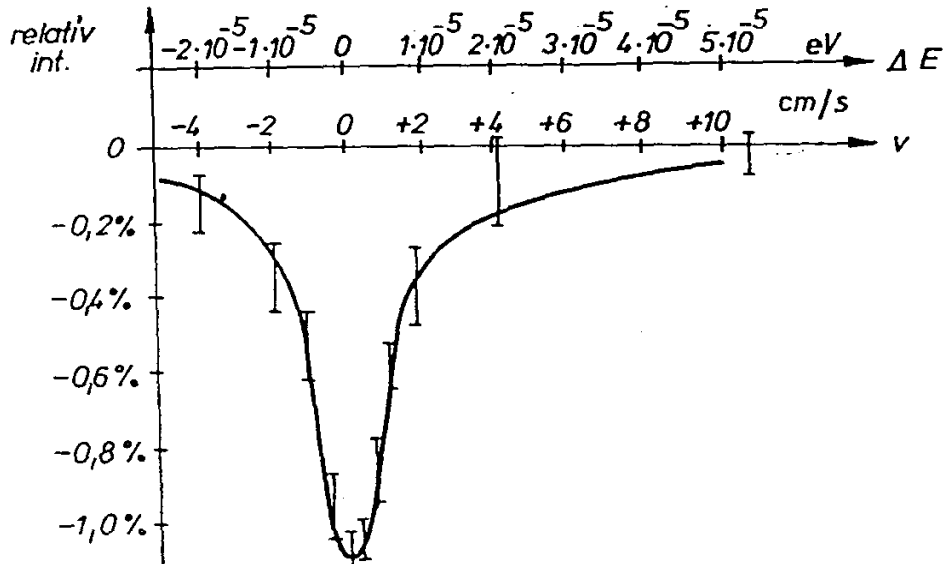
$\mu$ : magmagneton

$H$ : Mágneses tér a mag helyén

$m_I$ : impulzusmomentum  $H$  irányu vetülete

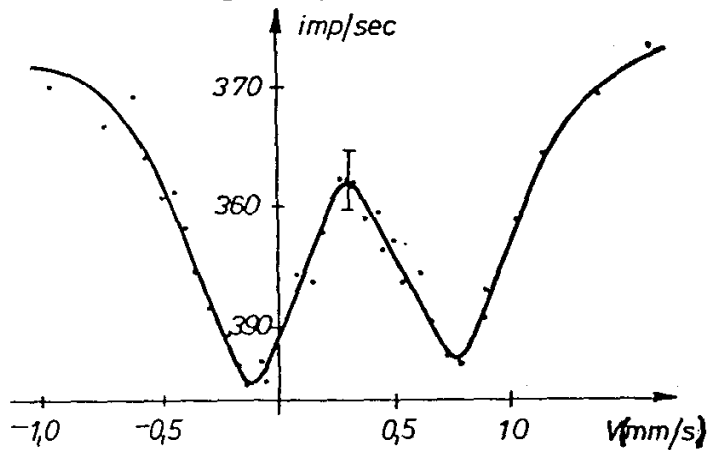
A vas esetében kétszer három vonal jelenik meg a mágneses tér miatt.

Mint alapvető esetre láthatunk példákat az 5.7, 5.8., 5.9 ábrákon.



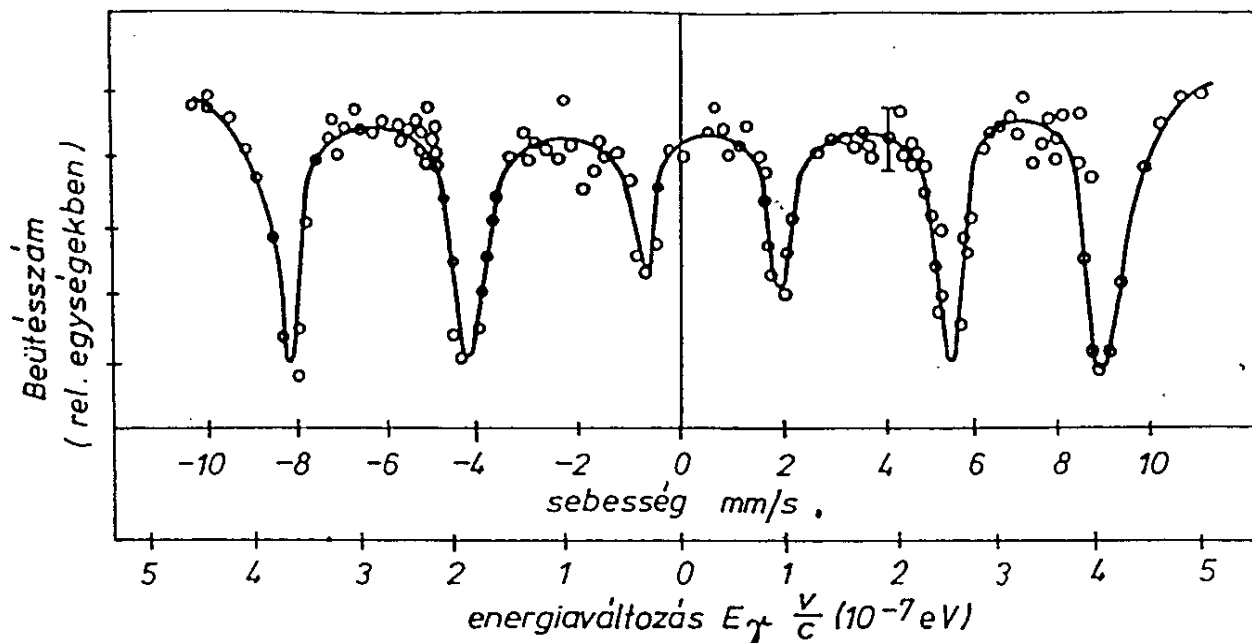
5.7 ábra

Egyvonalas Mössbauer spektrum (Izomér eltolódás  $\approx 0$ .) ( $^{191}\text{Ir}$  magon végrehajtott kísérlet)



5.8 ábra

Kvadrupól felhasadt Mössbauer spektrum. ( $^{57}\text{Fe}$  magon végrehajtott kísérlet)



5.9 ábra

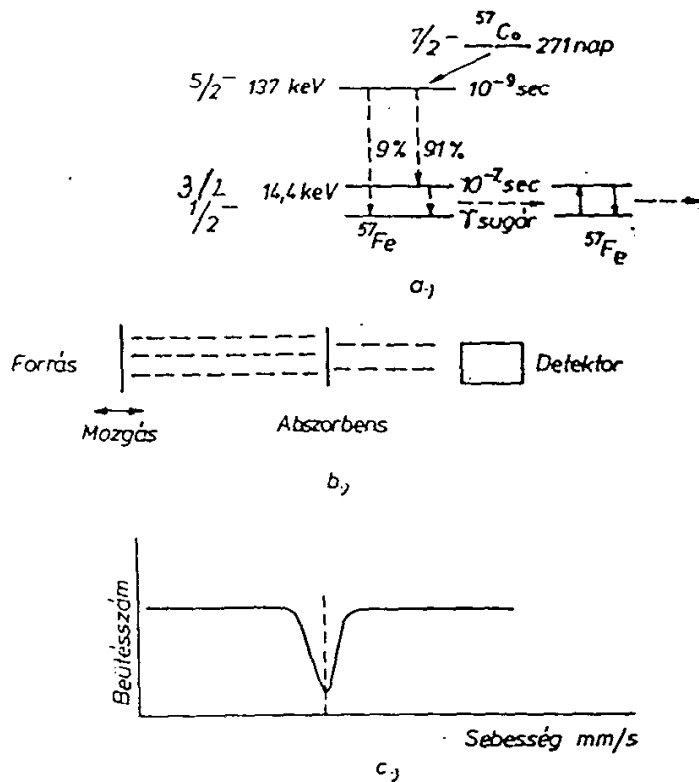
Mágnesesen felhasadt Mössbauer spektrum ( $^{57}\text{Fe}$  magon végrehajtott kísérlet)

## 5. Mérés és mérőberendezés

A Mössbauer spektrumot legcélszerűbben úgy vehetjük fel, ha olyan forrást mozgatunk a vizsgálandó abszorbenshez képest, amelyekben nincs felhasadás (5.7 ábra). Így a Doppler effektus segítségével mintegy letapogatjuk annak vonalrendszerét:

$$\Delta E = E_\gamma \frac{v}{c} \quad (16)$$

Elegendő sokszámu sebességértéknél, vagy folytonos sebességváltozás mellett detektált intenzitásváltozást regisztrálva megkapjuk magát a spektrumot. A Mössbauer-effektus feltételeit több atommag kielégíti (jelenleg 34 Mössbauer magot ismernek) (4. irodalom, 105. oldal), de leginkább az  $^{57}\text{Fe}$  és  $^{119}\text{Sn}$  használatos. Ezeknél a magoknál szobahőmérsékleten is jelentős az effektus. Az  $^{57}\text{Fe}$  energia-sémáját láthatjuk az 5.10 ábrán.



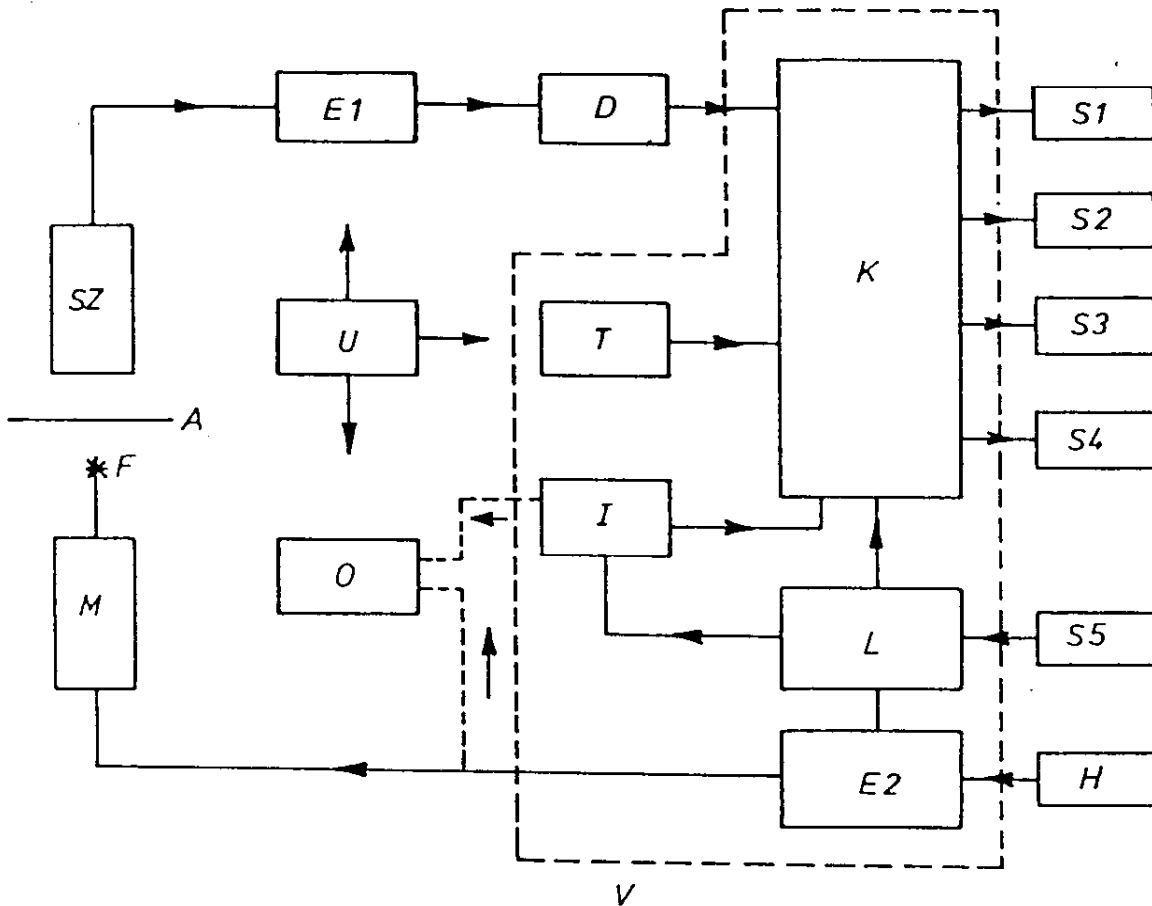
5.10 ábra

Az  $^{57}\text{Co}$  bomlássemája és a mérés elvi vázlata

### 5.1 Spektrumérés sebességpontonként

A mérőberendezés alkalmas, arra, hogy az  $^{57}\text{Fe}$  14,4 keV-es (vagy  $^{119}\text{Sn}$  26 keV-es) vonala segítségével méréseket végezzünk a 0,05-15 mm/s sebességtartományban. A berendezés bloksémája látható az 5.11 ábrán. Sz: egy szcintillációs detektor, amelyben egy elég vékony (vastagsága 1 mm-es, ez már rossz hatásfokkal detektálja a nagyobb energiákat) NaI(Tl) kristály, egy speciálisan kis zaju ( $E_{\text{zaj}} < 5 \text{ keV}$ ) EMI 9536S típusu fotomultiplier és egy katódkövető van. E: szcintillációs erősítő, D: egy differenciál diszkriminátor, amelynek segítségével kiválasztjuk az  $^{57}\text{Fe}$  14,4 keV-es vonalát. A szcintillációs fejhez stabil nagyfeszültségű tápegység adja a szükséges  $\sim 1 \text{ kV}$ -es nagyfeszültséget. A V jelű vezérlőegység oldja meg a mérés logikai feladatait. Részletezve: a K kapuáramkör biztosítja azt, hogy odamenetkor (+v) az  $S_1$  szkéler mérje a beütésszámot, az  $S_3$  szkéler pedig a T időgenerátorból jövő impulzusszámot (ami általában a hálózati 50 Hz-ből duplázzal előállított 100 Hz) és visszamenetkor (-v)  $S_2$  mérje a beütésszámot és az  $S_4$  az időt. Az  $E_e$  teljesítményerősítő erősíti a H hullám-formagenerátorból

jövő jelet megfelelő szintre az M elektromechanikus mozgató részére, amely célszerűen átalakított hangszórópár. Az L szintérzékelő elemzi a jelamplitudót és megfelelő értékek elérésénél, tehát a fordulók alatt tiltó jelet ad a K részére, valamint az  $S_5$  periódusszámláló számára is juttat impulzust. Az I áramkör oldja meg azt a feladatot, hogy csak teljes periódusnál kapcsoljon be vagy ki a mérőrendszer. Egyébként tiltó jelet ad a K egység részére.

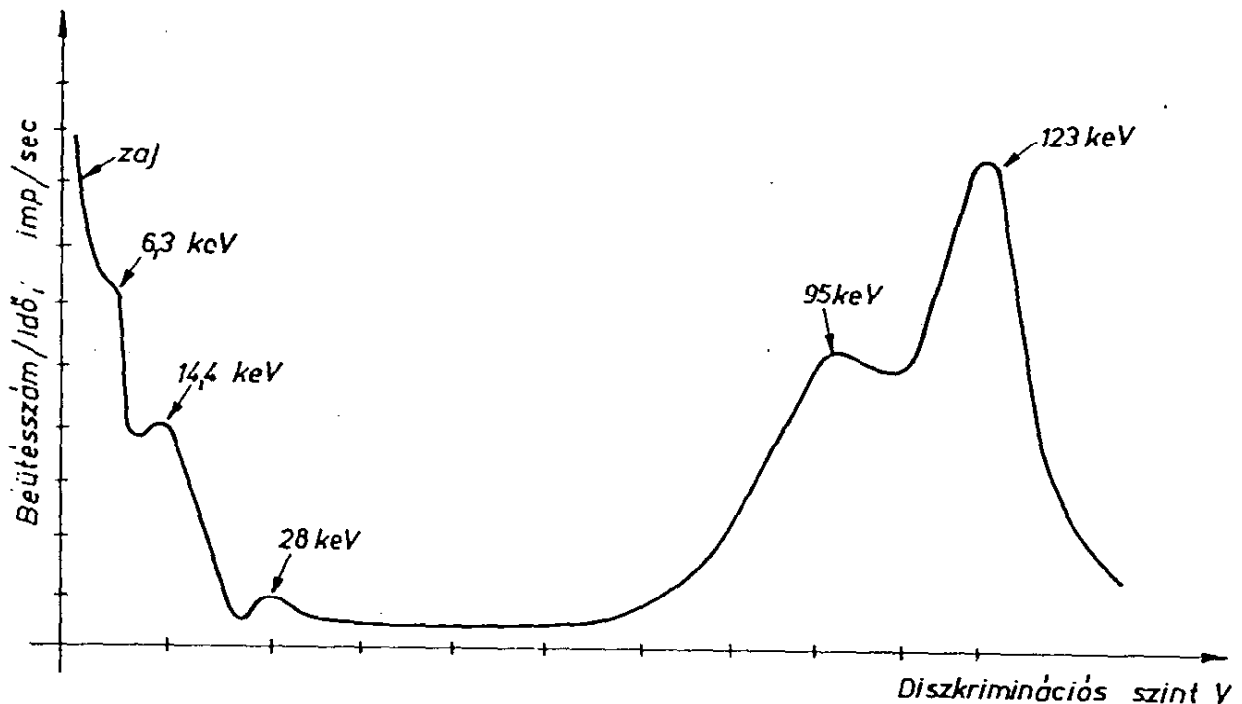


5.11 ábra

Pontonkénti spektrumfelvétel mérőberendezésének blokk-sémája

Ez az esetleges térszögproblémák (tul közeli forrás, abszorbens, detektor elrendezésnél a két szélső helyzetben különböző intenzitású sugárzást gyűjt össze a detektor.) megszüntetése miatt is célszerű. A 0 blokk (amely egy DC egyenáramu oszcilloszkóp) segítségével vizuálisan is nyomon követhetjük, ill. ellenőrizhetjük a vezérlőegység helyes (vagy helytelen) működését. Így láthatjuk rajta a fordulók letiltó jelét, vagy a meghajtó jel alakját. A sebesség számítása a mérőhelyen mellékelt táblázat segítségével végezhető el. A mérés első lépése a forrás gamma spektrumának felvétele. A készülék 1-2 órás bemelegedése után kezdhetjük el a mérést. Ez idő alatt kvalitatív vizsgálatokat lehet végezni. Az ND-108 időzítő áramkörét megfelelő

időre állítjuk, majd lassu mozgatsnál - amikor a számlálók ( $S_1$ ,  $S_3$ , vagy  $S_2$ ,  $S_4$ ) éppen számolnak - kihuzzuk a H-ból jövő kábelt, így biztosítjuk, hogy mozgats nélkül is működjenek a szkelerek. A nagyfeszültséget és erősítést úgy állítjuk be, hogy a teljes spektrum beleférjen a differenciál diszkriminátor skálájába. (Célszerű a teljes spektrumot az erősítő 20-szoros állásában, a nagyfeszültség óvatos állításával úgy beállítani, hogy a 122 keV-es csucs 40 és 50 Volt közé essen. Ezután az erősítést 50-szeresre állítva a 14 keV-es vonal a 10 és 20 Volt közé fog esni.) A spektrumot 2 voltos lépésekben vegyük fel (5.12 ábra). Így a teljes 14,4 keV-es vonalat be tudjuk fogni 10 V-os csatornaszélességgel. Ezután helyezzük el az abszorbenst a tartójába és kapcsoljuk  $\infty$  állásba az NK-108-ak időzítő áramkörét.



5.12 ábra

57 Fe szcintillációs spektruma. (A spektrum felvétele speciálisan kis zaju multiplierel, igen jó felbontóképességű differenciál diszkriminátorral és szcintillációs kristállyal készült.)

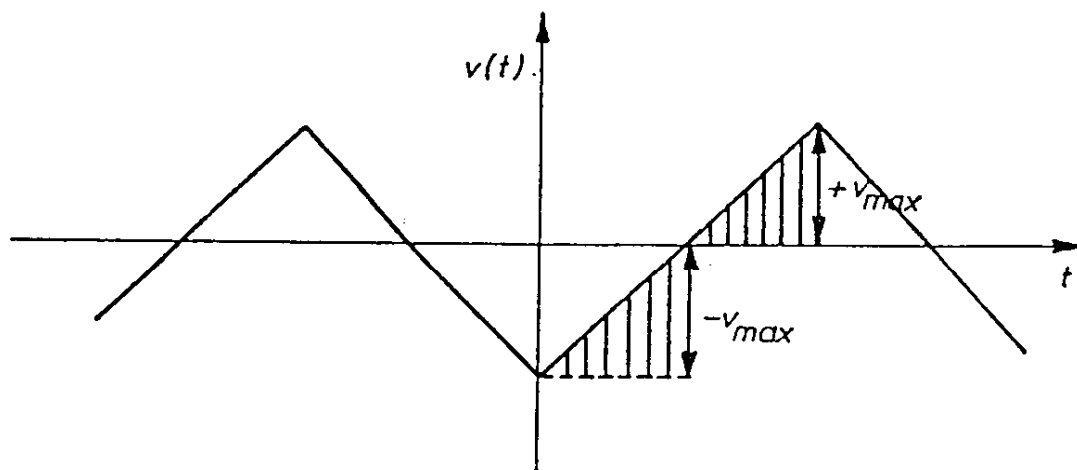
Következő lépésként mérjük  $v=0$  mm/s sebességnél. (Az összeállítás eddig ilyen állapotban volt.) Annyi beütést gyűjtünk össze, hogy lehetőleg a szórásból eredő hiba 1-2 % legyen. Ezután különböző sebességeknél mérjük. A sebességeket a mellékelt táblázat segítségével állíthatjuk be. A  $v$ -t célszerű 0,05 mm/s - 0,1 mm/s lépésenként változtatni. Mérés közben ajánlatos a  $v_{\max}$  ( $\approx 10$  mm/s) sebességen többször mérni, mert ezek a

pontok megmutatják a készülék időbeli instabilitását. Ezen pontok ismeretében egy korrekciós görbét kapunk, melynek segítségével a mérési görbénket ki tudjuk igazítani.

Minden mérés végén (adszorbensenként) háttérmérést kell végezni. A módszer a következő: 0,1–0,3 mm vastag rézlemez helyezünk a sugárzás útjába. Így kiszűrve a 14,4 keV-es vonalat a kapott beütésszám a berendezés teljes háttére, amelyet természetesen minden impulzusszámból le kell majd vonni.

## 5.2 Spektrumfelvétel folytonos sebességváltoztatással

Az előző esetben állandó sebességgel mozgattuk a mintát. Lehetséges a forrást állandó gyorsulással is mozgatni. Ekkor minden periódus alatt a sebesség nullától egy általunk meghatározott plusz és mínusz maximális értékig változik (l. 5.13 ábra). A pillanatnyi sebességekhez tartozó beütéseket külön rekeszekbe begyűjtve és ezt az összeget ábrázolva a sebesség függvényében megkaphatjuk a Mössbauer spektrumot. Az ilyen adatgyűjtést egy sokcsatornás analízátor képes elvégezni.



5.13 ábra

Sebességváltozás a sokcsatornás analízátoros mérésnél  
(A függőleges vonalak a sokcsatornás analízátor mintavétel típusu üzemeire utalnak)

A detektorból származó impulzusokat először amplitudó, majd idő szerint szelektáljuk. Az amplitudó szerinti szelekcióval elkülönítjük a Mössbauer átmenethez tartozó jeleket a detektorban keletkező egyéb eredetű jelektől (a szcintillátor és a forrás  $K_{\alpha}$  jelei, valamint a forrás többi  $\gamma$  átmenete és az azokhoz tartozó szekunder effektusok, (lásd 4. laboratóriumi gyakorlat)).



A Mössbauer átmenetbe tartozó jelek kiválogatása után az idő szerinti osztályozást az analizátor végzi. A mi berendezésünkben ez jelenleg úgy történik, hogy egy számláló berendezés (címregiszter) egy fél perióduson belül egyenlő időközönként ( $64 \mu\text{sec}$ ) tároló berendezés egymás után következő csatornáit kapuzza. Összesen 128 csatornát. Mivel azonban fél perióduson belül 5.13 ábra szerint az idő és a sebesség között lineáris függvénykapcsolat van, az idő szerinti osztályozás sebesség szerinti osztályozást is jelent.

$$v(t) = v_0 + a't.$$

A címregisztert egy startjel indítja, amely a háromszögjel ( $v$  változás) megindulását is jelenti, majd a 128 csatorna befejeztével viszont az analizátor ad egy jelet (szinkronjel) a háromszögjel befejezéséhez. Így biztosítjuk a mozgató és adatgyűjtés szigorú együttfutását.

Az állandó gyorsulás miatt az adott kis idő intervallumon belül is változik a sebesség, ezért az abszorbens vonalszélességénél néhányszor kisebbre kell választani egy csatorna sebességben kifejezett szélességét. Így elkerülhetjük az abszorpciós vonal elmosódását.

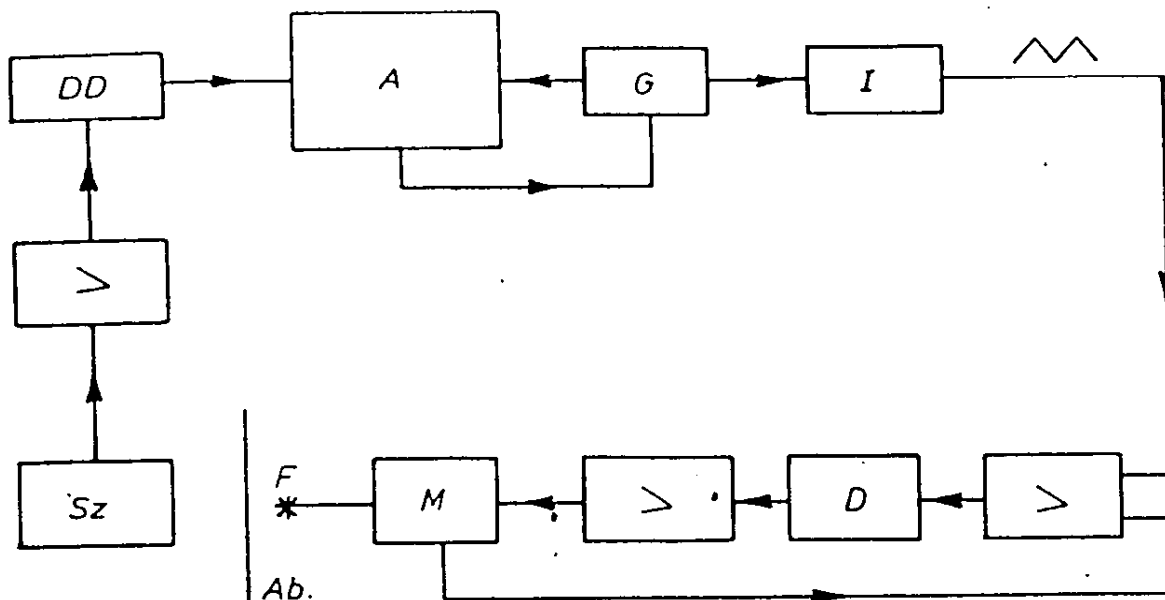
Mivel a sugárforrásban levő anyagok Doppler energiája arányos a sebességgel, teljesen általánosan írhatjuk, hogy

$$\Delta E \sim v \sim t \sim \text{csatornaszám}$$

Tehát a mérés befejeztével a csatornában tárolt beütésszámokat a csatornaszám függvényében ábrázolva megkapjuk a vizsgált minta Mössbauer spektrumát. Ez az ábrázolás történhet az ún. megjelenítő oszcilloszkóp - (ismertebb nevén Display ernyő) - segítségével, vagy  $x - y$  rajzolóval. A pontos kiértékeléshez egy nyomtatóval olvassuk ki a csatornák tartalmát, majd az így kiolvasott adatokat telexgép segítségével visszük lyukszalagra. Ezt a lyukszalagot használjuk fel a számítógéppel történő kiértékeléshez.

Tekintsük meg a berendezés blokkvázisát az 5.14 ábrán és vizsgáljuk meg részletesebben a rendszer működését.

A mozgató két összeépített hangszóróból áll, melyeknek a tekercsei plexirud segítségével szintén egymáshoz vannak rögzítve. A plexirudhoz vannak rögzítve a sugárforrások is. A meghajtó tekercsbe impulzust vezetünk. A másik (mintavevő) tekercsből jövő jelet összehasonlító (differenciál) erősítőre vezetjük. A másik bemenetre a jelet egy négyszöggenerátorral állítjuk elő, amelynek a periódusidejét az analizátorral szinkronizáljuk és ezt integrálva jön létre a lineáris háromszög (referencia) jel. A különbségi jelet (a tulajdonképpeni hibajel) differenciálás és igen nagy erősítés után a mozgató meghajtására használjuk. Ez egy ún. követő szabályozás, amely annál jobban közelíti a referenciajelet, minél nagyobb a szabályozó kör hurokerősítése, vagy, ami ugyanaz, a kívánt jellemzőtől való eltérést a minél nagyobb hurokerősítés egyre jobban csökkenti.



5.14 ábra

A sokcsatornás mérési elv egyik lehetséges megvalósítása

A: Analizátor	> : Erősítők
Ab: Abszorbens	DD: Differenciál diszkriminátor
G: Négyzöggenerátor	M: Mozgató
I: Integrátor	Sz: Szcintillációs mérőfej
D: Differenciátor	F: Forrás

Részletesen a II. éves elektronikus laborjegyzet<sup>7)</sup> foglalkozik a mozgató szabályozókörével. A mozgató működéséhez szükséges referenciajel előállítása viszont eltér az említett jegyzettől, mivel abban maga az analízátor fontos szerepet játszik. Az analízátor címregiszterét ugyanis a generátor triggerjele indítja. A csatornák leszámhlálása után ( $128 \times 64 \mu\text{sec} = 8192 \mu\text{sec}$ ) az analízátor ad triggerjelet, amely a monostabil multivibrátorként működő generátort kvázisstabil állapotba billenti. A visszabillesztés időtartama kb. megegyezik az analízátor aktív idejével. Az analízátor és a generátor oly módon van összekapcsolva, mint két NAND kapuból felépített RS flip-flop. Tehát négyzöggenerátorként működik. A kapott négyzögjelet integráló erősítőn pontos háromszög alakú impulzussá formáljuk és ezt használjuk referenciajelnek. Az I, D és a két erősítő nagyerősítésű integrált műveleterősítőkből és RC elemekből áll.

Figyelmeztetés:

A sokcsatornás analízátornál a laboratóriumban levő berendezés kezelésére az ott dolgozó technikus, illetve a jelenlévő oktató oktatja ki a mérést végző hallgatókat, akik a mérést ezután önállóan végzik. Illetéktelen a laboratóriumban nem tartózkodhat.

Megjegyzés:

A valódi vonalszélesség precíz kiszámítása meglehetősen nehézkes. Ennek elkerülése az alábbi gyakorlatban jobban használható és elegendően pontos képletet célszerű használni:

$$\Gamma_{\text{mért}}/\Gamma = \frac{T_A + T_F + 8}{4} - \frac{(T_A + T_F)^2}{625}$$

Itt:  $T_A$  és  $T_F$  : az abszorbens és a forrás effektív vastagsága "

$$= f \cdot n \cdot a \cdot \sigma_0 \cdot t$$

f : Mössbauer faktor (effektus nagyság)

n : A magok száma/cm<sup>3</sup> ( $= \frac{\rho}{A} N$ )

a : A megfelelő izotópok %-os aránya

$\sigma_0$  : Abszorpciós hatáskeresztmetszet a rezonancián

t : Tényleges vastagság cm-ben

Mérési feladatok:

1. Egysatornás spektrométerrel:

1.1 Vegyük fel az  $^{57}\text{Co}$   $\gamma$  spektrumát, majd nagyítsuk ki a 14 keV körüli részt a jegyzetben ismertetett eljárással. Ábrázoljuk a mérési adatokat.

1.2 Vegyük fel egy kijelölt abszorbens Mössbauer spektrumát. Ábrázoljuk a mérési eredményeket és végezzük el a korrekciókat.

2: Sokcsatornás spektrométerrel:

2.1 Végezzük el az 1.1 feladatot sokcsatornás analízátorral is.

2.2 Vegyük fel két minta Mössbauer spektrumát. Az egyik minta legyen azonos az 1.2 feladatban már egyszer lemerített abszorbenssel.

2.3 A spektrumok alapján állapítsuk meg:

- A Mössbauer effektus nagyságát
- A korrigált vonalszélességek alapján a nivók élettartamát
- Ha kvadrupól felhasadt a spektrum, akkor a térgradienst, vagy a kvadrupólmomentumot
- Ha mágneseszen felhasadt spektrum adódott, úgy ki kell számítani a mágneses tér nagyságát.

Irodalom:

1. Keszthelyi Lajos: Mössbauer effektus és alkalmazásai  
Magyar Fizikai Folyóirat 9, 289, (1961)
2. Rudolf L. Mössbauer: A visszalökés nélküli magrezonancia-abszorpció és jelentősége a nagy pontosságú méréseknél.  
Tudomány és Emberiség 331, (1963)
3. Korecz László: A Mössbauer effektus és alkalmazásai  
Fizika 1976. 71, (1976)
4. Burger Kálmán: A Mössbauer spektroszkópia alkalmazása a komplex kémiában.  
A kémia újabb eredményei 9. kötet.  
Akadémiai Kiadó, Budapest, (1972)
5. Vértes Attila: Oldatszerkezeti vizsgálatok Mössbauer spektroszkópiával.  
A kémia újabb eredményei 28. kötet. Akadémiai Kiadó,  
Budapest. (1975)
6. Marx György: Kvantumelektrodinamika  
Tankönyvkiadó, Budapest. (1976) 180-185. old.
7. Ambrus Lajos-Mag Pál: Elektronikus laboratóriumi mérések  
Tankönyvkiadó, Budapest. (1977) 165-170. old.

# Mössbauer-spektroszkópia (kiegészítés Korecz László jegyzetéhez)

Nagy Dénes Lajos

*KFKI Részecske- és Magfizikai Kutatóintézet,  
1525 Budapest, p.f. 49.*

## 1. Bevezetés

A haladó szintű hallgatói laboratórium számára a Mössbauer-spektroszkópia mérést eredetileg *Korecz László* hirdette meg. Néhány hónappal ezelőtt bekövetkezett halála akadályozta meg őt abban, hogy ezt a mérést is a tőle megszokott pontossággal készítse elő és gondozza. Jegyzetének alapja minden bizonnyal a korábbi tanterv hasonló jegyzetének [8] 5. fejezete lett volna. Jelen jegyzet ezért csak folytatása, kiegészítése *Korecz László* jegyzetének; innen adódik a fejezetek és a hivatkozások szokatlan számozása.

Mivel az új tanterv szerint az egy mérésre fordított idő meghosszabbodott, az eredeti mérési feladatokat néhány továbbival egészítettük ki. Ebben a félévben a Mössbauer-spektroszkópia, mint mérési gyakorlat a részecske- és magfizikai specializáció programjában szerepel, ezért az újabb mérések is magfizikai jellegűek. Az első foglalkozáson a nyomtatott jegyzetben szereplő mérésekre kerül sor az Atomfizikai Tanszéken. A további mérések helye a KFKI Részecske- és Magfizikai Kutatóintézet Magfizikai Osztályának Mössbauer-laboratóriuma (Budapest, XII., Konkoly-Thege út 29-33., 13. épület, 7. sz. helyiség).

### 4.2.3 A spektrumvonalak szögeloszlása

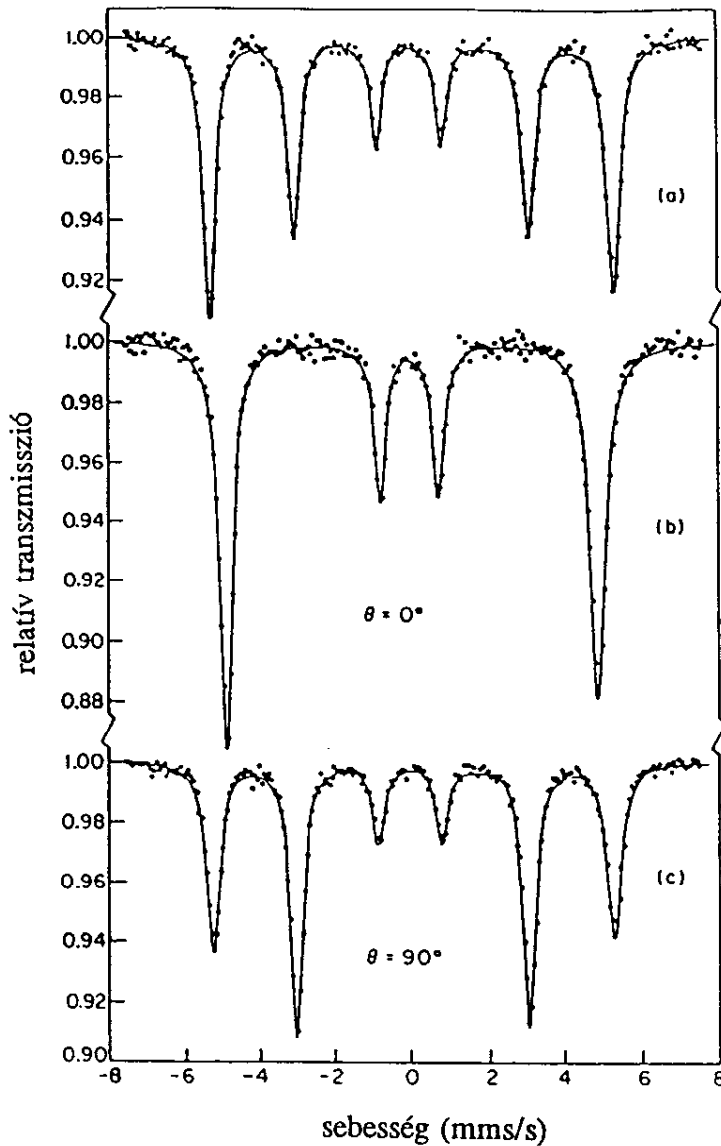
A magnívók mágneses felhasadása legtöbbször még néhányszor 10 T intenzitású mágneses térben is lényegesen kisebb, mint a hőmérsékleti energia (ez a feltétel csak kb. néhányszor 10 mK hőmérséklet alatt nem teljesül; ilyenkor beszélünk magorientációról). Ugyanez igaz az elektromos kvadrupólus-kölcsönhatásra is. Ezért megszoktuk, hogy a gamma-sugárzás izotróp módon hagyja el a forrást és hogy rezonancia-abszorpció esetén izotróp módon is nyelődik el.

Mindez csak a gamma-átmenet teljes intenzitására igaz. Ha külön-külön tudjuk megfigyelni a gerjesztett és az alapállapot egyes alnívói közötti átmeneteket - márpedig felhasadt spektrumvonalak esetén egy Mössbauer-mérésben pontosan ezt tesszük -, akkor figyelembe kell vennünk, hogy az egyes átmenetek a kvantálási tengelyekhez (pl. a mágneses tér irányához vagy az elektromos térgradiens-tenzor főtengelyeihez) képest jól meghatározott szögeloszlással rendelkeznek. Az egyes

átmenetek szögeloszlásának átlaga természetesen most is izotróp, hiszen az egyes alnívók szokásos hőmérsékleten egyenletesen vannak betöltve.

A spektrumvonalak szögeloszlása jól tanulmányozható a fém-vas mágneseesen felhasadt spektrumán (5.15 ábra). Az (a) spektrum 1. és 6. vonala között a távolság (szobahőmérsékleten) 10.625 mm/s (ezt a spektrumot szokták spektrométer kalibrálására felhasználni és - önkényesen - e spektrum középpontját választották az  $^{57}\text{Fe}$ -spektrumok esetében a  $\nu = 0$  pontnak is. A spektrum felhasadása 33.06 T intenzitású mágneses térnek felel meg. Ez a tér döntően a 4s elektronok polarizációjától származik, amit viszont a 3d elektronok polarizációja okoz. Ez utóbbiak hordozzák a vas kompenzálatlan mágneses nyomatékát. Egy ferromágneses tartományon (Weiss-féle doménon) belül a mágneses nyomatékok egymással párhuzamosan állnak, mivel a fémes ( $\alpha$ -) vas ferromágneses anyag. Az egyes tartományok mágnesezettségei viszont véletlenszerűen orientáltak. Mivel a magra ható mágneses teret a fenti okoknál fogva a külső tér a 3d-4s kölcsönhatás negatív előjele miatt önmagával ellentétes irányba állítja be, az eredetileg véletlenszerűen irányított belső tér is rendeződni fog a külső térnek megfelelően. Az, hogy mekkora külső mágneses térre van szükség ahhoz, hogy valamennyi mágneses nyomatékot egymással párhuzamosra állítsuk be, erősen függ a minta alakjától és - anizotróp minta esetén - a külső térnek a mintához viszonyított helyzetétől. Ennek oka a lemágnesezési tér alak- és irányfüggése [9]. Vékony vasfólia mágneses nyomatékai nagy valószínűséggel már eleve a minta síkjában vannak; e síkon belül egy irányba történő beállításukhoz néhányszor 10 mT elegendő. Ugyanezen fóliában a nyomatékoknak a minta normálisának irányába való beállításához több T erősségű mágneses térre van szükség.

Az 5.15 ábra (a) spektruma olyan vas-fólián készült, amelyben a domének mágnesezettsége véletlenszerűen oszlott el. A (b) spektrum esetében egy erős  $B_k$  külső mágneses tér a fotonok  $k$  terjedési irányával párhuzamosra állította be a domének mágnesezettségét és így ellentétesre a  $B_0$  belső mágneses teret. A külső és a belső tér ellentétes előjele jól látható abból, hogy a (b) spektrum teljes felhasadása kisebb a (a) spektruménál. A (c) spektrum úgy készült, hogy  $B_k$  merőleges volt  $k$ -ra (és - viszonylag vékony fóliáról lévén szó - a (b) mérésben alkalmazott  $B_k$ -nál jóval kisebb volt). A (c) spektrum teljes felhasadása nem is különbözik észrevehetően az (a) spektrumétól. Az igazán lényeges különbséget a három spektrum között azonban a 2. és az 5. vonal intenzitásában látjuk.  $B_k \parallel k$  esetén ezek a vonalak teljesen hiányoznak, míg  $B_k \perp k$  esetén ezek a legerősebbek. Ennek oka éppen az egyes átmenetek különböző szögeloszlása.



5.15 ábra.  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer-spektrumok  $\alpha$ -vas abszorbens esetén. Forrás:  $^{57}\text{Co}$  Pt-ban. a) az abszorbens fel nem mágnesezett vas (a  $B_0$  belső terek irányai véletlenszerű izotróp eloszlást mutatnak). b) az abszorbens felmágnesezett vas, melynek mágnesezettsége és így a  $B_0$  belső tér is párhuzamos a gamma-sugarak  $k$  terjedési irányával. c) az abszorbens felmágnesezett vas, melynek mágnesezettsége és így a  $B_0$  belső tér is merőleges a gamma-sugarak  $k$  terjedési irányára.

Mivel a magnívók jól meghatározott  $I$  impulzusmomentum-kvantumszámmal,  $\pi$  paritással és - tiszta mágneses kölcsönhatás esetén - szintén jól meghatározott  $M$  mágneses kvantumszámmal rendelkeznek, ugyanez igaz az elektromágneses átmenetben emittált vagy abszorbeált fotonra is. A kibocsátott sugárzást tehát klasszikusan a Maxwell-egyenleteknek jól definiált  $lh$  impulzusmomentumú és  $\pi$  paritású megoldásai fogják leírni. Ezek a Maxwell-egyenletek *multipólus-megoldásai*:

$$B_l^m = f_l(kr) L Y_l^m(\Theta, \Phi) \quad E_l^m = i (c/k) \text{ rot } B_l^m \quad (\text{E})$$

$$E_l^m = f_l(kr) L Y_l^m(\Theta, \Phi) \quad B_l^m = -i (1/ck) \text{ rot } E_l^m \quad (\text{M})$$

Itt az  $f_l(kr)$  függvények csak radiális függést mutatnak,  $Y_l^m(\Theta, \Phi)$  a gömbfüggvényeket jelenti,  $L$  pedig az impulzusmomentum kvantummechanikai differenciáloperátora. Az (E) egyenletek az elektromos  $2^l$ -pólus (E $l$ ), az (M) egyenletek a mágneses  $2^l$ -pólus (M $l$ ) sugárzást írják le. Látható, hogy az E-átmenet paritása  $(-1)^l$ , míg az M-átmeneté  $(-1)^{l+1}$ . Emellett teljesülni kell az impulzusmomentumokra a háromszög-egyenlőtlenségnek:

$$l = I_i + I_f, I_i + I_f - 1, \dots, |I_i - I_f| \quad (16)$$

ahol az "i" index a mag kezdő-, "f" pedig a végállapotára utal.

Az  $^{57}\text{Fe}$  14.4 keV-es gerjesztett állapotának impulzusmomentuma  $I_g = 3/2$ , alapállapotáé  $I_a = 1/2$ . Mindkét nívó páratlan paritású. Az előbbieket alapján világos, hogy e két nívó között csak M1 és E2 átmenetek lehetségesek. Az adott esetben az E2-járulék elhanyagolható; az átmenet tisztán M1 (azaz mágneses dipólus-) jellegűnek tekinthető.

A megfigyelt intenzitás az energiaáram-sűrűséggel, vagyis a Poynting-vektorral arányos:

$$S = (1/\mu_0) (E \times B) \quad (17)$$

Figyelembe véve, hogy a hullámzónában

$$|E| = c |B| \quad (18)$$

valamint hogy  $E$  és  $B$  egymásra merőlegesek, az (E) és (M) egyenletek felhasználásával arra az eredményre jutunk, hogy a Poynting-vektor abszolút értéke akár elektromos, akár mágneses  $2^l$ -pólus-sugárzás esetén ugyanazzal az iránykarakterisztikával rendelkezik:

$$|S| \sim |L Y_l^m(\Theta, \Phi)|^2 \quad (19)$$

Ez természetesen azt jelenti, hogy a kibocsátott gamma-sugárzás iránykarakterisztikája alapján nem lehet az E $l$ - és az M $l$ -sugárzást egymástól megkülönböztetni. Erre csak a sugárzás polarizációjának megfigyelésével nyílik mód.

A (19) egyenletből némi további számolással már könnyen megkaphatjuk az  $l, m$  kvantumszámokkal jellemzett átmenet  $F_l^m(\Theta)$  normált szögeloszlását (emlékeztetőül:  $2^l$  az átmenet multipolaritása,  $m$  pedig a két mágneses kvantumszámának különbsége):

$$F_l^m(\Theta) = |L Y_l^m(\Theta, \Phi)|^2 / \sum_k |L Y_l^k(\Theta, \Phi)|^2 \quad (20)$$

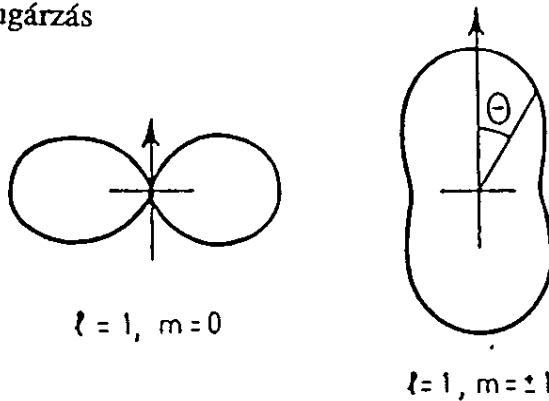


Amint az várható volt, az iránykarakterisztika nem függ a  $\Phi$  azimutszögtől. Az  $F_l^m(\Theta)$  függvényeket dipólus- és kvadrupólus-sugárzás esetére az 5.1 táblázat, illetve az 5.16 ábra tartalmazza. Figyeljük meg, hogy az  $F_1^0(\Theta)$  függvény pontosan megfelel a klasszikus rezgő pontdipól energiaáram-sűrűségének a hullámzónában!

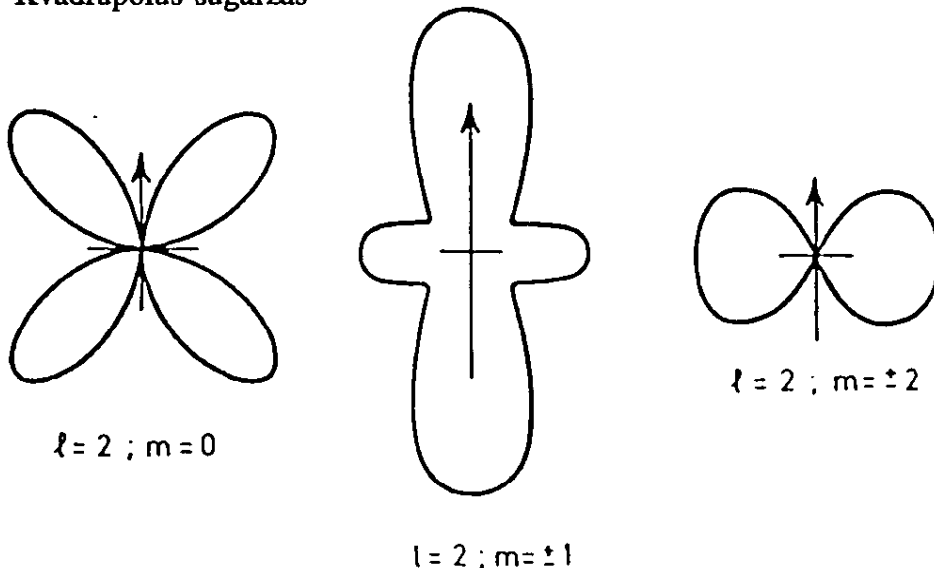
5.1 táblázat: az  $F_l^m(\Theta)$  szögeloszlás-függvények dipólus- és kvadrupólus-sugárzás esetére

	$m = 0$	$m = \pm 1$	$m = \pm 2$
$l = 1$ (dipólus)	$(1/2) \sin^2\Theta$	$(1/4) (1 + \cos^2\Theta)$	-----
$l = 2$ (kvadrupólus)	$(3/2) \sin^2\Theta \cos^2\Theta$	$(1/4) (1 - 3\cos^2\Theta + 4\cos^4\Theta)$	$(1/4) (1 - \cos^4\Theta)$

Dipólus-sugárzás



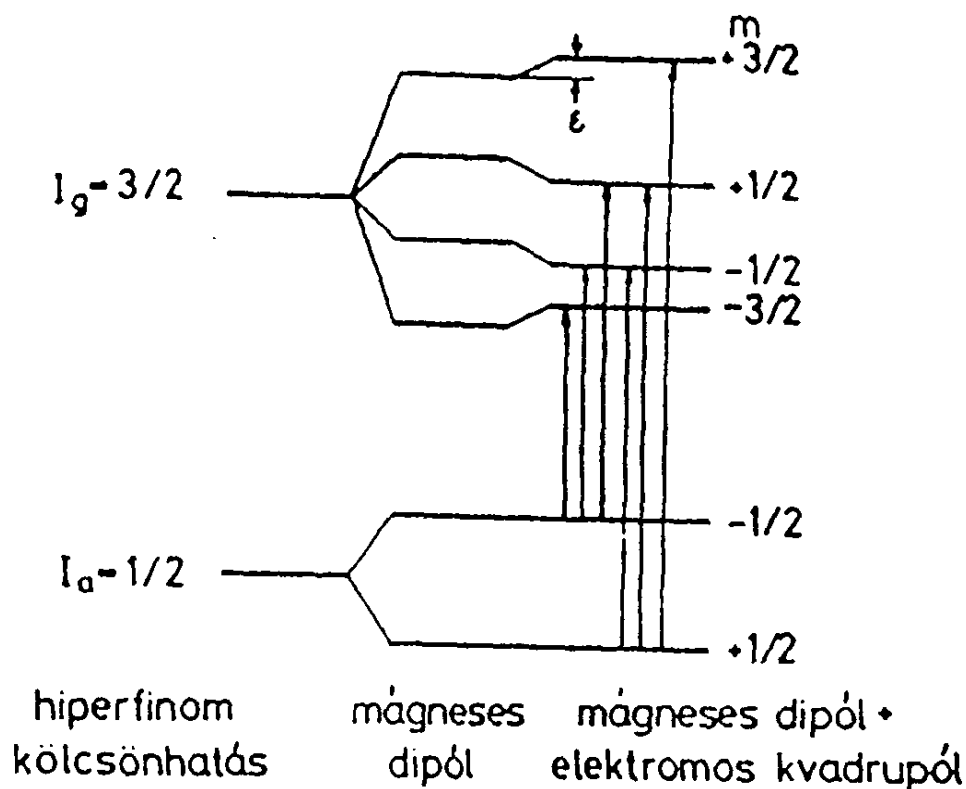
Kvadrupólus-sugárzás



5.16 ábra. A tiszta dipólus- és kvadrupólus-sugárzás iránykarakterisztikája

Az 5.15 ábrán látható spektrumvonalak az 5.17 ábrán bejelölt átmeneteknek felelnek meg. (Az ábra jobb oldalán az az általánosabb eset szerepel, amikor a mágneses felhasadást egy kis kvadrupólus-kölcsönhatás perturbálja [10].) Világos, hogy a spektrumvonalak balról jobbra haladva (tehát növekvő energia szerint) az  $m = -1, 0, +1, -1, 0, +1$  mágneses kvantumszám-változásoknak felelnek meg. Ha tehát a kvantálási tengely ( $B_b$ ) és a megfigyelési irány ( $k$ )  $\Theta$  szögét változtatjuk, a spektrumvonalaknak rendre az  $F_1^1(\Theta), F_1^0(\Theta), F_1^1(\Theta), F_1^1(\Theta), F_1^0(\Theta), F_1^1(\Theta)$  szögfüggést kell mutatniuk. A (19) egyenletből nemcsak az iránykarakterisztika, hanem az egyes átmenetek relatív intenzitásai is megkaphatók. M1 átmenet esetén arra az eredményre jutunk, hogy az  $M_a, M_g$  mágneses kvantumszámokkal jellemzett spektrumvonal intenzitása

$$I(M_a, M_g, \Theta) \sim \begin{pmatrix} I_g & 1 & I_a \\ M_g & m & -M_a \end{pmatrix}^2 F_1^m(\Theta) \quad (21)$$



5.17 ábra.  $1/2 \Rightarrow 3/2$ -es dipólus-átmenet felhasadása mágneses dipólus és kombinált hiperfinom kölcsönhatás esetén.

A (21) egyenletben előforduló 3-j szimbólumok négyzeteinek értéke:

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ -3/2 & 1 & 1/2 \end{pmatrix}^2 = 3/12$$

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ -1/2 & 0 & 1/2 \end{pmatrix}^2 = 2/12$$

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ 1/2 & -1 & 1/2 \end{pmatrix}^2 = 1/12$$

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ -1/2 & 1 & -1/2 \end{pmatrix}^2 = 1/12$$

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ 1/2 & 0 & -1/2 \end{pmatrix}^2 = 2/12$$

$$\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 1/2 \\ 3/2 & -1 & -1/2 \end{pmatrix}^2 = 3/12$$

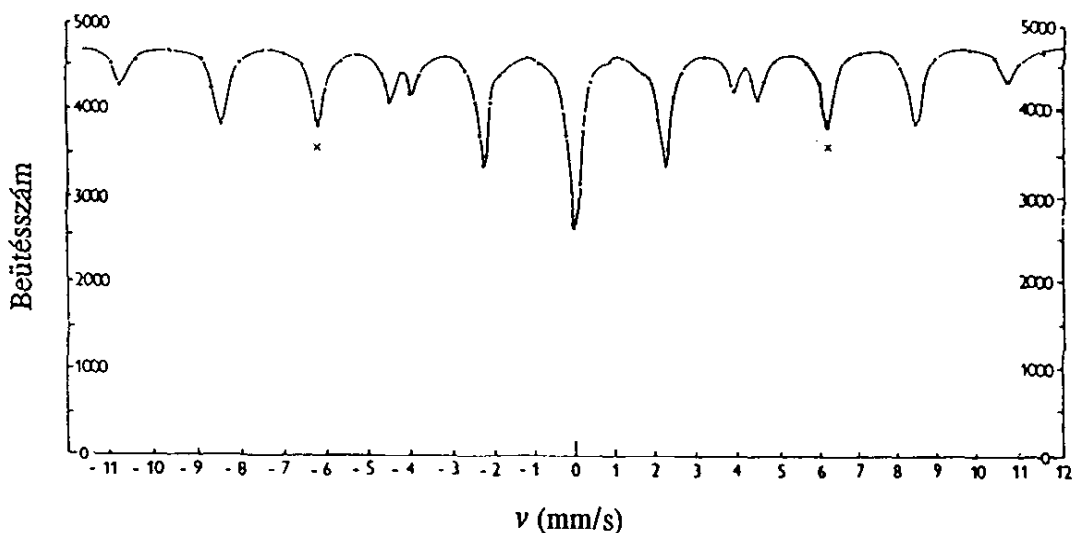
A (21) egyenlet segítségével most már bármilyen  $\Theta$  esetén meghatározhatjuk a spektrumvonalak várható relatív intenzitását.

#### 4.2.4 A spektrumvonalak polarizációja

Az egyes átmenetektől származó gamma-kvantumoknak nemcsak jól meghatározott iránykarakterisztikája, de jól meghatározott polarizációja is van. Ez természetesen csak akkor vizsgálható, ha már a forrásból is polarizált fotonokat kapunk, amit csak úgy érhetünk el, ha egyvonalas forrás helyett olyan forrást alkalmazunk, amelyben a magnívókat egy meghatározott irányval rendelkező hiperfinom kölcsönhatás (pl. belső mágneses tér) felhasította. Itt is igaz az, amit az iránykarakterisztikáról mondtunk: extrém alacsony hőmérsékletektől eltekintve, a forrásból *átlagosan* mindig polarizálatlan sugárzást kapunk. Az egyes átmenetek azonban ettől még nagyon is jól meghatározott polarizációval rendelkezhetnek.

A jelenséget legjobban olyan forráson figyelhetjük meg, amelynek a radioaktív  $^{57}\text{Co}$  magokat befogadó kristályrácsa  $\alpha\text{-Fe}$  és ezt a forrást az optikai tengelyre merőlegesen telítésig mágnesezzük. A forrás spektruma ilyenkor - a vonalhelyeket és az intenzitásvizonyokat illetően - teljesen megegyezik az  $\alpha\text{-Fe}$  ugyanilyen körülmények között mért transzmissziós spektrumával, ami a 5.15 ábra (c) spektrumának felel meg (v.ö. 2. kérdés és 3. mérési feladat). Az optikai spektroszkópiából ismert Zeeman-effektushoz hasonlóan ilyen geometriai feltételek teljesülése esetén valamennyi spektrumvonal lineáris polarizációt mutat, mégpedig a mágneses térrel rendre párhuzamosan, merőlegesen, párhuzamosan, párhuzamosan, merőlegesen, párhuzamosan. Ezt a forrást, a szokásos módon mozgatva, az abszorbens ugyancsak felhasadt spektrumvonalainak esetleges polarizációját is megfigyelhetjük, ha az abszorbenst az optikai tengely körül elforgatva más-más helyzetekben mérjük.

Természetesen most jóval bonyolultabb spektrumokra kell számítanunk, mint eddig, hiszen általában a forrás valamennyi vonalával "letapogatjuk" az abszorbens valamennyi vonalát. Ezt a 5.18 ábrán bemutatott spektrumon érthetjük meg, amely  $^{57}\text{Co}/\alpha\text{-Fe}$  forrással és  $\alpha\text{-Fe}$  abszorbenssel készült. A spektrum most 15 vonalból áll, hiszen mindannyiszor minimumot kapunk a beütésszámban, valahányszor a forrás 6 vonala közül bármelyik átfedésbe kerül az abszorbens 6 vonalának bármelyikével. Hogy mégsem 36 vonalat figyelünk meg, hanem annál kevesebbet, annak az az oka, hogy az  $\alpha\text{-Fe}$  spektrumában az 1. és a 2. vonal távolsága ugyanakkora, mint a 2. és 3. vonal távolsága és hogy a spektrum szimmetrikus (v.ö. 4. kérdés).



5.18 ábra. Polarizálatlan  $\alpha\text{-Fe}$  abszorbens spektruma polarizálatlan  $^{57}\text{Co}/\alpha\text{-Fe}$  forrással mérve

Ha nemcsak a forrás, de az abszorbens is az optikai tengelyre merőlegesen álló és a saját síkjában (tehát ugyancsak az optikai tengelyre merőlegesen) mágnesezett  $\alpha\text{-Fe}$  fólia, akkor annak vonalai úgyszintén lineárisan polárosak. Ha a forrás és az abszorbens mágnesezettségei egymással párhuzamosak, akkor csak az azonos polarizációjú vonalak "látják egymást", pl. a forrás 1. vonala

"látja" az abszorbens 1., 3., 4. és 6. vonalát, a forrás 2. vonala "látja" az abszorbens 2. és 5. vonalát, a forrás 3. vonala "látja" az abszorbens 1., 3., 4. és 6. vonalát, stb. A spektrum egyszerűbb lesz; nem látszik az 5.18 ábrán megfigyelhető 15 vonal mindegyike (v.ö. 6. kérdés). A spektrum legerősebb vonalát nyilván  $\nu = 0$ -nál figyelhetjük meg: itt a forrás minden vonala az abszorbens megfelelő vonalával esik egybe. Gyökeresen más spektrumot fogunk megfigyelni, ha a forrás és az abszorbens mágnesezettségei egymásra merőlegesek, hiszen ekkor egyik vonal sem a saját megfelelőjét "látja" (v.ö. 7. kérdés). Ez a módszer, a *Mössbauer-polarimetria* lehetővé teszi a hiperfinom kölcsönhatás irányának nagy pontosságú meghatározását egykristályokban és homogén mágneses szerkezetű anyagokon.

### 5.3 Nem-transzmissziós mérési technikák

A Mössbauer-spektroszkópiának az eddig megismert transzmissziós technikán kívül számos más módszere is van.

Az *emissziós* technika alkalmazása esetén a vizsgálandó anyagba juttatjuk a radioizotópot. Ilyenkor a forrás spektrumát vizsgáljuk; az abszorbens, ami az analizátor szerepét játssza, egyvonalas. A módszer előnye igen nagy érzékenysége, hátránya viszont, hogy a magátalakulás a vizsgálandó rendszert megzavarhatja. A radionuklidot általában diffúzióval juttatják a mintába, de esetenként izotópszeparátorral implantálják, vagy nagy gyorsítók mellett közvetlenül a rezonáns izotópot implantálják a mintába Coulomb-gerjesztett állapotban. Az emissziós technika koincidencia-módszerrel kombinálva időfüggő jelenségek vizsgálatát teszi lehetővé.

A Mössbauer-nívó bomlása legtöbbször nemcsak foton, hanem konverziós elektron kibocsátásával is végbemehet, sőt e folyamat általában jóval ( $^{57}\text{Fe}$  esetén pl. kb. egy nagyságrenddel) valószínűbb a fotonos bomlásnál. A konverziós elektronokat detektálhatjuk pl. úgy, hogy a mintát egy gázproporcionális számláló belsejébe helyezzük, de vákuumban is kimutathatjuk őket, pl. channeltronnal. Mivel a konverziós elektronok a mintát csak a legfelső (általában mintegy 100 nm vastagságú) rétegből tudják elhagyni, a szerkezeti információ is csak ebből a rétegből származik. Ez a *konverziós elektron Mössbauer-spektroszkópia* (CEMS). Az elektronok energiáját analizálva a módszer - legalább is kvalitatíve - mélységszelektívvé tehető (DCEMS).

Detektálhatjuk a mintában gerjesztett állapotba kerülő mag bomlásából származó, inkoherensen szórt gamma-sugarakat is. Ezzel az eljárással kedvezőtlen alakú minták is vizsgálhatók, hátránya viszont, hogy legtöbbször igen erős forrásra van szükség a megvalósításához. Ez a *gamma-szórás* technika.

A konverziós elektron lyukat hagy maga után az elektronhéjban (általában a K-héjban). Ez a lyuk vagy Röntgen-fotonok, vagy Auger-elektronok kibocsátása kíséretében töltődik be a magasabban fekvő héjakról. A vas esetében ez az egyik oka pl. a 6.4 keV-es vonal megjelenésének a fotonospektrumban. Mivel ezek a fotonok végül is egy Mössbauer-folyamat végén keletkeztek, a

rezonancia ugyanúgy megfigyelhető rajtuk, mint a 14.4 keV-es fotonokon. Kimutatásukra általában nem szcintillációs, hanem proporcionális számlálót használnak, annak jobb energiafelbontása és kisebb zaja miatt. A kisenergiájú Röntgen-fotonok a mintának szintén csak a felső (bár a konverziós elektronok esetéhez viszonyítva jóval vastagabb, általában néhány  $\mu\text{m}$  vastagságú) rétegéből hoznak információt (v.ö. 7. mérési feladat). Az eljárást *röntgen-szórás* technikának nevezzük.

Egykristályokon Bragg-irányokban koherens gamma-szórás is megfigyelhető, amely fontos szerkezeti információkat tartalmaz. Ez a *Mössbauer-diffrakció*.

A fenti módszerek számos további változata és kombinációja van (súroló beeséses szórás, totálreflexiós szórás, szelektív gerjesztésű kettős Mössbauer-rezonancia, stb.). A legutóbbi években indult fejlődésnek a Mössbauer-spektroszkópia egy egészen új ága, a *szinkrotron-Mössbauer-spektroszkópia*. Ez nem radioizotópot használ sugárforrásként, hanem a szinkrotronsugárzás rendkívül intenzív fehér spektrumából választja ki azt a néhány neV vagy  $\mu\text{eV}$  széles tartományt, amely a magrezonancia-szóráshoz szükséges. A szinkrotronsugárzás különleges tulajdonságai (nagy intenzitás, időben pulzáló jelleg, nagyfokú kollimáltság és a polarizáció magas foka) egészen új típusú méréseket tesznek lehetővé. A mérés itt alapvetően különbözik a hagyományos méréstől, amennyiben - kihasználva a gerjesztés pulzáló jellegét - a hiperfinom kölcsönhatást nem az energia; hanem (lényegében annak Fourier-transzformáltjaként) a szórt intenzitás időbeli lefutása által méri.

#### 5.4 A spektrumok kiértékelése

A Mössbauer-spektrumok sokcsatornás analizátor tárolójában keletkeznek, mint részecskeszámlálókból érkező beütésszámok. Az egyes mérési pontok ezért Poisson-eloszlást követnek. Mivel a háttér mindig igen jelentős, a beütésszámok elég nagyok ahhoz, hogy a Poisson-eloszlást Gauss-eloszlással közelíthessük és így a legkisebb négyzetek módszerét alkalmazhassuk.

Vékony minta esetén a spektrum csúcsai Lorentz-görbék. Egy Lorentz-görbének 3 paramétere van (amplitúdó, hely, szélesség).  $N$  csúcs esetén az illesztendő paraméterek száma tehát  $3N + 1$  lenne (a spektrum alapvonalát is illeszteni kell). Az 5.18 ábrán látható spektrumot eszerint 46 paraméterrel kellene illeszteni. Szerencsére a spektrumot ennél jóval kevesebb paraméter is leírja, amelyeknek a csúcsok paraméterei lineáris függvényei. A 15 vonalhely pl. összesen két paramétertől (a spektrum középpontja és teljes felhasadása) függ. Ezt a tényt használja ki az *MMS-SIRIUS* program, amellyel a mérési feladatok kiértékelhetők. A program a mellékfeltételeket lineáris transzformációk formájában veszi figyelembe [10], melyeket u.n. T-mátrixok formájában saját könyvtárban tárol, de lehetőség van új mátrixok írására illetve régiak editálására is. A program a legkisebb négyzetek módszerét használja módosított Newton-iterációval. A programot az Olivetti M28-as PC C: diszkjének *ELTE* nevű aldirektorijából indítjuk az *MMS* utasítással. A program teljesen menüvezérelt és módot ad a mért spektrumok kiolvasására is a sokcsatornás analizátorból. A kiértékelés eredményét célszerű file-ba írni, majd onnan kinyomtatni. Kinyomtatás előtt ellenőriz-

zük, hogy a lézer-nyomtató parallel portja aktív-e! Először mindig a nyomtatót kell bekapcsolni, csak utána a PC-t; ellenkező esetben újra kell indítani az operációs rendszert.

### A KFKI RMKI spektrométerének kezelése

A KFKI RMKI spektrométere folytonos sebességváltoztatással működik és elvi felépítése lényegében megfelel az 5.14 ábrán láthatónak. A sebességtartományt az NZ-640 jelű sebességvezérlő egységen középen felül lévő háromállású kapcsolóval és a mellette található helipottal állítjuk be. A beállított sebesség csak körülbelüli érték; általában kalibráció szükséges. Esetünkben erre csak a 8. mérés előtt lesz szükség, mivel a többi mérés  $\alpha$ -Fe abszorbensen történik, így önmagát kalibrálja. A mozgatót a "TRANSDUCER" kapcsolóval helyezzük üzembe ("ON"). Ezután kb. egy percet várni kell, amíg a mozgató stabilizálódik (ezt a "POS. CONTR." feliratú fénydióda villogásának megszűnése jelzi). A mérést a "START" kapcsoló felnyomásával indítjuk (ugyanitt lehet a mérést leállítani). A mérés során a "MEASURING" fénydióda világít.

A mérés indítása előtt ellenőrizni kell, hogy az egységen jobboldalt alul található peremkereskes kapcsolók beállítása összhangban van-e az ICA-70 analízátor beállításával.

Az ICA-70 analízátor lehetőséget ad az erősítő és a differenciál-diszkriminátor (DD) beállításának ellenőrzésére is. Ekkor az analízátor hátulján lévő két megjelölt kapcsolót fel kell kapcsolni, majd - üres tárolórész kiválasztása után - "DOUBLE" üzemmódban kell amplitúdóanalízist végezni. Az erősítő kimenő jele ilyenkor az analízátor "DIRECT IN" bemenetére, a DD kimenő jele az analízátor "GATE IN" bemenetére csatlakozik. A beállítás befejezése után ne felejtjük el a hátoldali kapcsolókat visszabillenteni!

A detektorok nagyfeszültsége a mérés megkezdésekor általában helyesen van beállítva; azon ne változtassunk! Detektorcsere esetén (8. mérés) a nagyfeszültség bekapcsolása előtt az összeállítást ellenőriztessük az oktatóval vagy a technikussal!

Figyelem! A forrást csak az oktató vagy a technikus cserélheti! A Mössbauer-laboratórium C-szintű izotóplaboratórium, amelyben csak zárt preparátumokkal szabad dolgozni. A sugárvédelmi szabályokat szigorúan be kell tartani! Illetéktelen személy a laborban nem tartózkodhat!

### Kérdések

1. Egy  $\alpha$ -vas mintában a mágneses domének mágnesezettségének iránya teljesen véletlenszerű eloszlást mutat. Vékony abszorbens esetén milyen lesz a spektrumvonalak várható relatív intenzitása?

2. Egy vékony vas-fóliát saját síkjában telítésig mágnesezünk, majd Mössbauer-spektrumot veszünk fel a minta síkjára merőleges irányban. Milyen intenzitásarányokat várunk az egyes spektrumvonalak között?

3. Hány fokkal kell az előző kérdésben szereplő mintát az optikai tengelyre és a minta mágnesezettségére merőleges tengely körül elforgatni ahhoz, hogy olyan intenzitásviszonyokat kapjunk, mint nem mágnesezett minta esetén?

4. Miért azonos az  $\alpha$ -Fe spektrumában az 1. és a 2. vonal távolsága a 2. és a 3. vonal távolságával? Miért szimmetrikus a spektrum?

5. Rajzoljunk fel két papírszalagra sematikusan egy-egy  $\alpha$ -Fe-spektrumot (megjelölve a vonalhelyeket, melléírva a vonalintenzitásukat)! A két papírszalagot egymáshoz képest eltolva, figyeljük meg, hogy mikor mely vonalak esnek egybe! Ennek segítségével magyarázzuk meg a 5.18 ábrán látható spektrumot (a vonalak helyeit és intenzitásait)!

6. Hogyan módosul az 5. kérdés spektruma, ha mind a forrást, mind az abszorbenst az optikai tengelyre merőlegesen, de egymással párhuzamosan telítésig mágnesezzük (a külső tér hatása a vonalhelyekre elhanyagolható)? Mely vonalak maradnak meg a 5.18 ábrán megfigyelhetők közül és milyen intenzitásokkal?

7. Hogyan módosul az 5. kérdés spektruma, ha mind a forrást, mind az abszorbenst az optikai tengelyre és egymásra is merőlegesen telítésig mágnesezzük (a külső tér hatása a vonalhelyekre elhanyagolható)? Mely vonalak maradnak meg a 5.18 ábrán megfigyelhetők közül és milyen intenzitásokkal?

### Mérési feladatok

3. Hajtsuk végre a 2. kérdésben szereplő mérést egy  $^{57}\text{Co}/\text{Rh}$  forrással és egy permanens mágnesekkel ellátott mintatartóba helyezett  $15\ \mu\text{m}$  vastag  $\alpha$ -Fe abszorbenssel! Értékeljük ki a kapott spektrumot! Van-e eltérés a várt intenzitásarányoktól? Ha igen, mi lehet az oka?

4. Hajtsuk végre a 3. kérdésben szereplő mérést is! Értékeljük ki a kapott spektrumot! Van-e eltérés a várt intenzitásarányoktól? Ha igen, mi lehet az oka?

5. Hajtsuk végre a 6. kérdésben szereplő mérést egy permanens mágnes sarkai közé helyezett  $^{57}\text{Co}/\alpha$ -Fe forrással és egy permanens mágnesekkel ellátott mintatartóba helyezett  $15\ \mu\text{m}$  vastag  $\alpha$ -Fe abszorbenssel! Értékeljük ki a kapott spektrumot! Van-e eltérés a várt intenzitásarányoktól? Ha igen, mi lehet az oka?



6. Hajtsuk végre a 7. kérdésben szereplő mérést egy permanens mágnes sarkai közé helyezett  $^{57}\text{Co}/\alpha\text{-Fe}$  forrással és egy permanens mágnesekkel ellátott mintatartóba helyezett  $15\ \mu\text{m}$  vastag  $\alpha\text{-Fe}$  abszorbenssel! Értékeljük ki a kapott spektrumot! Van-e eltérés a várt intenzitásarányoktól? Ha igen, mi lehet az oka?

7. Vegyük fel egy dúsított izotópból készült egyvonalas K-ferrocianid minta spektrumát transzmisszióban és röntgen-szórásban! Mi a döntő különbség a két spektrum között? Van-e különbség a vonalszélességekben? Miért?

## Irodalom

8. Kiss Ádám, Korecz László: Magfizikai laboratóriumi gyakorlatok IV. éves fizikus és geofizikus hallgatók részére. Kézirat, 4. kiadás, Tankönyvkiadó, Budapest, 1992, 106. old.
9. C. Kittel: Bevezetés a szilárdtestfizikába, Műszaki Könyvkiadó, Budapest, 1981.
10. Nagy Dénes Lajos: A Mössbauer-spektroszkópia alapjai. Segédkönyv IV. és V. éves fizikus szakos hallgatók számára. KFKI, Budapest, 1979.