

**MASTER**

**Bouw van een tweetal Mössbauer spectrometers**

Tromp, H.H.M.

*Award date:*  
1967

[Link to publication](#)

**Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

**General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

**Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

TECHNISCHE HOGESCHOOL EINDHOVEN  
AFDELING DER TECHNISCHE NATUURKUNDE

BOUW VAN EEN TWEETAL  
MÖSSBAUER SPECTROMETERS

Afstudeerverslag

van

H.H.M. Tromp

Afstudeeropdracht uitgevoerd in de  
groep "Physische analysemethoden"  
o.l.v. Prof. Dr. P. van der Leeden.

## INHOUD.

I. Afstudeeropdracht	1
II. Mössbauer spectrometrie	2
III. Mössbauer spectrometer met "konstante" snelheid	10
IV. Mössbauer spectrometer met "konstante" versnelling	13
V. Cryostaat	16
VI. Notities betreffende: - verwerking van de meetgegevens - enige meetresultaten	19
Litteratuur	23
<u>Bijlagen:</u>	
I. Spectrum	
II. Spectrum ijzerfolie konstante snelheids spectrometer	
III. Spectrum $K_3Fe(CN)_6 \cdot 3H_2O$ konstante snelheids spectrometer	
IV. Vergelijking spectra	
V. Spectrum ijzerfolie konstante versnellings spectrometer	
VI. Schakeling	
VII. Investeringsen	
VIII. Spectrum ferri acetaat	

I De afstudeeropdracht heeft bestaan uit:

1. Het bouwen van een constante snelheids en van een constante versnellings Mössbauerspectrometer.
2. Het controleren van de bruikbaarheid van deze spectrometers, door metingen aan een ijkpreparaat en vergelijking met de resultaten van derden aan een gelijk preparaat.
3. Het bouwen van een voor Mössbauermetingen geschikte Helium cryostaat, en daarnaast,
4. Het verrichten van enig voorbereidend en oriënterend werk op het gebied van:
  - a. verwerken van meetgegevens en objectivering van lijn-analyses;
  - b. literatuurdocumentatie;
  - c. zo mogelijk proefmetingen aan een stof met Curie- dan wel Néelpunt.

## II. Mössbauer spectrometrie.

### Principe van het Mössbauereffect.

Een Mössbauerspectrometer berust op resonantieabsorptie van gammastraling door atoomkernen (fig. 2.1).

Wanneer nu de emitterende kernen een snelheid  $v$  wordt gegeven ten opzichte van de absorberende kernen, dan geeft dit ten gevolge van het Dopplereffect een energieverandering van de straling

$$E = v/c \cdot E_0$$

2.1.

waarin  $E_0$  de oorspronkelijke energie van de gammastraling is,  $v$  de snelheid van de emitterende gammabron ten opzichte van de absorber en  $c$  de lichtsnelheid ( $v \ll c$ ).

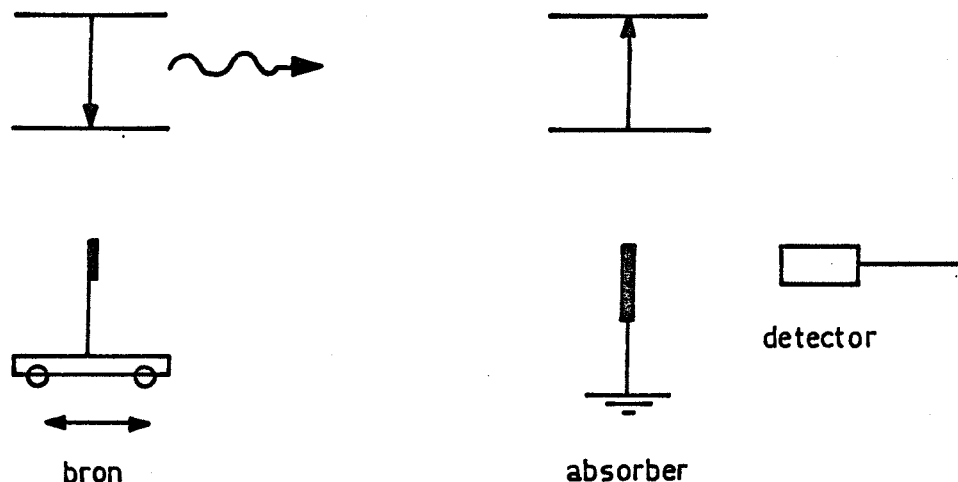


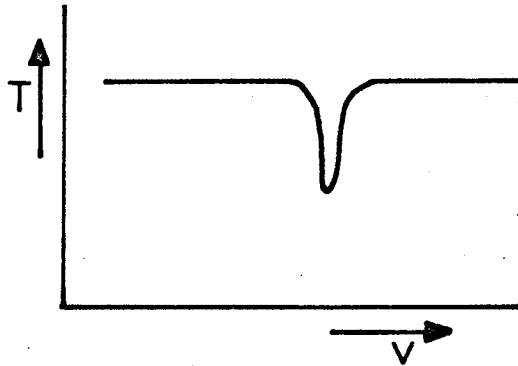
fig. 2.1. principe Mössbauer effect

Voor gammastraling van 14 keV en voor een snelheid van de bron ten opzichte van de absorber van 0,1 mm/sec is de energieverandering van de gammastraling ongeveer  $10^{-9}$  eV.

Dit is in dezelfde orde van grootte als de lijnbreedte van de gammastraling ten gevolge van de onzekerheid in de energieniveau's.

Een snelheid van 10 mm/sec geeft een energieverandering welke ongeveer overeenkomt met de magnetische opsplitsing van de kern in een magnetisch veld van 30 Weber/m<sup>2</sup>.

Wanneer we nu de transmissie van de gammastraling uitzetten als functie van de snelheid van bron t.o.v. absorber krijgen we een Mössbauerspectrum zoals in figuur 2.2. voor een enkelvoudig energieniveau is weergegeven.



mössbauer spectrum van enkelvoudig niveau  
fig. 2.2.

In geval van een magnetische splitsing vinden we meerdere van deze absorptielijnen.

De lijnbreedte komt overeen met tweemaal de natuurlijke lijnbreedte, welke volgt uit de onzekerheidsrelatie

$$\Delta E_t \cdot \Delta t = \hbar \quad 2.2.$$

Voor de vorm van de lijn wordt meestal de Lorentzkromme aangenomen:

$$I = 1 - a \cdot b / ((v-c)^2 + b^2) \quad 2.3.$$

Bovenstaande is slechts mogelijk dank zij het door R. Mössbauer in 1958 ontdekte feit (L 2.1) dat de bovengenoemde emissie en absorptie van gammastraling door atoomkernen in een kristalrooster kan plaatsvinden zonder dat:

- de gammastraling een deel van zijn energie verliest voor een terugstoot van de kern ten gevolge van het behoud van impuls. Deze terugstootenergie

$$E_0 / 2M \cdot c^2 \quad 2.4.$$

is in de orde van grootte van  $10^{-3}$  eV. (M is massa atoomkern).

- de gammastraling een energieverandering van  $10^{-3} - 10^{-4}$  eV krijgt ten gevolge van de Dopplerverschuiving wegens het trillen van het atoom in het rooster.

De kans op deze mogelijkheid wordt gegeven door de terugstootloze fractie

$$f = \exp(-k^2 \langle x^2 \rangle) \quad 2.5.$$

waarin  $k$  het golfgetal van de gammastraling en  $x$  de plaats van de atoomkern is.

Een en ander onder voorwaarde dat de trillingstijd van de roostertrillingen (orde van  $10^{-13}$  sec) kleiner is dan de levensduur van het niveau (orde van b.v.  $10^{-9}$  sec.).

Magnetische dipoolsplitsing.

Een magnetisch veld ter plaatse van de kern veroorzaakt een opheffing van een  $2I + 1$ -voudige ontaarde toestand ( $I$  is de kernspin van die toestand). De grootte van de opsplitsing wordt gegeven door

$$E_h = g_n \mu_n^m I H \quad 2.6.$$

waarin  $H$  het magnetisch veld ter plaatse van de kern,  $m_I$  het magnetisch quantum getal van de kern,  $g$  de Landé factor en  $\mu_n$  het kernmagneton. De opsplitsing door een magneetveld is in fig. 2.3. weergegeven voor de grond- en 14,4 keV toestand van  $Fe^{57}$ .

Voor  $Fe^{57}$  geldt  $g$  (grondtoestand) =  $0,0903 \pm 0,0007$  nm (L. 2.2)  
 en  $g$  (14,4 keV toest.) =  $-(0,153 \pm 0,004)$  nm (L. 2.3.)

Het magnetisch veld ter plaatse van de kern kan beschouwd worden als de som van vijf termen (L. 2.4).

1. polarisatie van de binnenste s-elektronen (Fermi-contactterm) ( $-30, -35$  Wb/m<sup>2</sup>);
2. polarisatie van de 4-s-elektronen door de 3d-elektronen ( $8-10$  Wb/m<sup>2</sup>);
3. menging van 3d en 4s band ( $9$  Wb/m<sup>2</sup>);
4. dipoolveld van buren; ( $0$  Wb/m<sup>2</sup> voor symmetrische omringing);
5. baanbijdragen van "unquenched" moment van de 3d-elektronen ( $5$  Wb/m<sup>2</sup>).

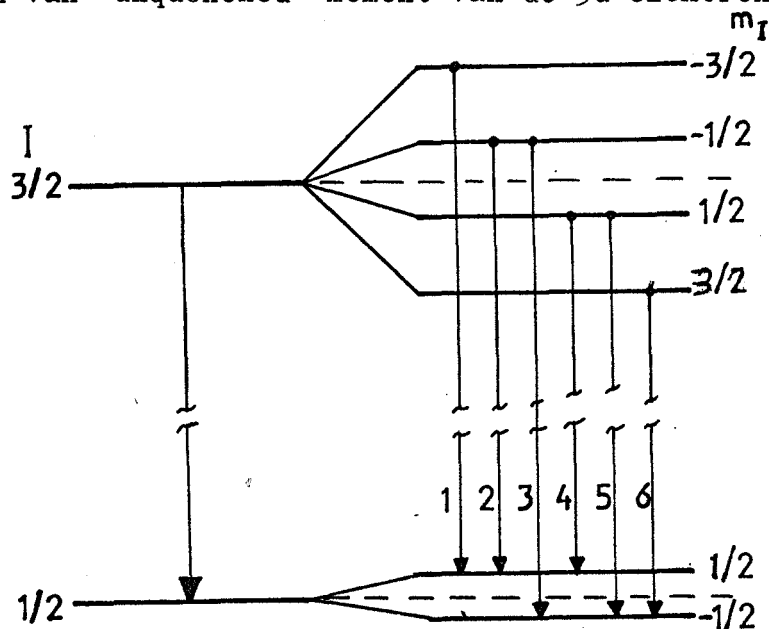


fig.2.3. magnetische dipoolsplitsing voor Fe

fig. 2.3.

De energiever verschillen voor de verschillende overgangen zijn respectievelijk

$$(-0.549, -0.243, 0.063, 0.243, 0.549) \mu_n H. \quad 2.7.$$

Elektrische quadrupoolsplitsing.

Een elektrische veldgradient ter plaatse van de kern geeft een splitsing van energie niveau's wanneer de kern een elektrisch quadrupool moment bezit.

Kernniveau's met spin  $\frac{1}{2}$  of 0 bezitten geen quadrupool.

De elektrische veldgradient wordt beschreven door een drie maal drie tensor, deze is door assentransformatie te brengen in diagonaalvorm waaruit met gebruikmaking van  $\Delta V = 0$  twee onafhankelijke parameters overblijven.

Het is gebruikelijk als parameters te kiezen:

$$q = d^2 V/dz^2 \text{ en } \eta = (d^2 V/dx^2 - d^2 V/dy^2) / (d^2 V/dz^2) \quad 2.8.$$

Fe<sup>57</sup> heeft in de grondtoestand spin  $\frac{1}{2}$  dus geen quadrupoolsplitsing, in de aangeslagen toestand van 14,4 keV is de spin  $3/2$  en het quadrupoolmoment is

$$(2,9 \pm 0,2) 10^{-3} \text{ m}^2 \text{ (L. 2.5)}$$

De grootte van de quadrupoolsplitsing voor een niveau met spin  $3/2$  wordt gegeven door:

$$E_q = \pm \frac{1}{4} e^2 q Q (1 + \eta 2/3)^{\frac{1}{2}} \quad 2.9.$$

De elektrische veldgradient ter plaatse van de kern wordt bepaald door:

$$q = (1 - R) \cdot q_{\text{atoom}} + (1 - \gamma) \cdot q_{\text{rooster}} \quad 2.10.$$

$$\eta = (1 - R) \cdot \eta_{\text{atoom}} + (1 - \gamma) \cdot \eta_{\text{rooster}}$$

Waarin  $q_{\text{atoom}}$  de elektrische veldgradient veroorzaakt door een asymmetrische elektronenverdeling van het atoom (ion) en  $q_{\text{rooster}}$  de elektrische veldgradient veroorzaakt door de omringende ionen. R en  $\gamma$  zijn de sternheimer factoren voor de afscherming door de binnenste elektronen (L. 2.6.)



Elektrische monopool verschuiving (Isomeer Shift)

De wisselwerking van de elektrische monopool van de kern met de s-elektronen is afhankelijk van de straal van de kern. Aangezien de straal van de kern in de grondtoestand niet hetzelfde is als in de aangeslagen toestand en de wisselwerking met de s-elektronen in de bron en in de absorber niet gelijk is, geeft dit een verschuiving van de absorptie lijn:

$$I.S. = 2/5 \cdot Ze^2(R_a^2 - R_g^2)(|\psi_s(0)|^2 - |\psi_a(0)|^2) \quad 2.11.$$

waarin  $R_a$  en  $R_g$  respectievelijk de straal van de kern in de aangeslagen- en in de grondtoestand en  $|\psi_s(0)|^2$ ,  $|\psi_a(0)|^2$  respectievelijk de elektronen dichtheid ter plaatse van de kern in de absorber en in de bron.

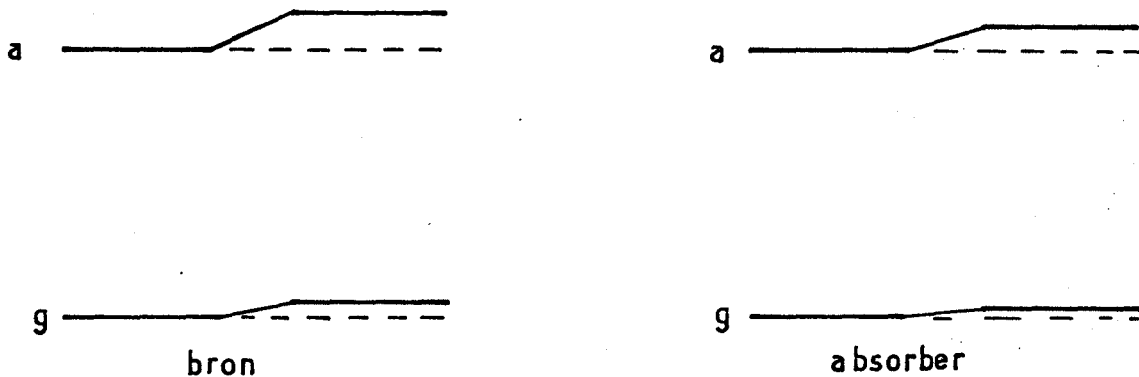


fig. 2.4. Isomeer shift

Tweede orde doppler verschuiving.

Behalve de elektrische monopool verschuiving geeft het tweede orde doppler effect ook een verschuiving gegeven door

$$\Delta_{sod} = \frac{1}{2}(\langle v^2 \rangle / c^2) E_0 \quad 2.12$$

waarin  $\langle v^2 \rangle$  de verwachtingswaarde van het kwadraat van de snelheid van de kern. Deze laatste is afhankelijk van de roostertrillingen en daarmee van de temperatuur.

Wanneer we voor het rooster een Debije-model aannemen geldt:

$$\Delta_{sod} = 9/16M (\theta_b - \theta_a) + 3/2M [T_b \cdot f(T_b/\theta_b) - T_a \cdot f(T_a/\theta_a)] \quad 2.13$$

a, b: absorberbron,  $\theta$ : debijetemperatuur,  $f(x)$  debije funktie.

De isomeer shift moet dus bepaald worden door de gemeten verschuiving van de absorptie lijn te corrigeren voor bovengenoemd effect. Opgemerkt moet worden dat bij extrapolatie van de verschuiving naar 0°K behalve de Isomeer-

Shift ook de tweede orde doppler verschuiving nog aanwezig is tengevolge van rooster trillingen bij het nulpunt.

Terugstootloze fraktie.

De fraktie terugstootloos geëmitteerde of geabsorbeerde quanten wordt gegeven door  $f = \exp(-k^2 \langle x^2 \rangle)$ , zie 2.5.

Wanneer voor het rooster een debije model wordt aangenomen:

$$f = \exp(-2 [3R/k \theta_D (\frac{1}{4} + (T/\theta_D)^2 \int_0^{\theta/T} (x dx/e^x - 1))] ) \quad 2.14.$$

$\theta_D$  : debije temperatuur  
 $R$  :  $E_0^2/2Mc^2$

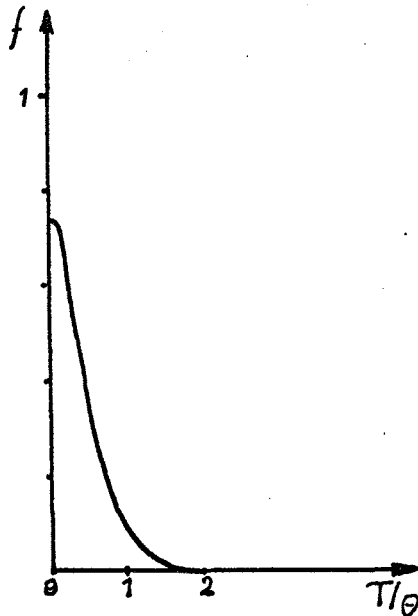


fig. 2.5. Terugstootloze fraktie

Oplossend vermogen.

Het oplossend vermogen van het mössbauer effect wordt in principe beperkt door de lijnbreedte van de kernniveau's.

De lijnbreedte van het 14,4 keV niveau van  $Fe^{57}$  is  $4,6 \cdot 10^{-9}$  eV, de grondtoestand is stabiel. Dit betekent dat slechts energiën van minstens  $4,6 \cdot 10^{-9}$  eV kunnen worden onderscheiden. Dit komt voor de magnetische dipoolsplitsing overeen met velden die tenminste  $0,97 \text{ W/m}^2$  ( $9,7 \cdot 10^3$  Oe) moeten bedragen. Terwijl de elektrische veldgradient om een waarneembare quadrupoolsplitsing te geven ten minste  $6,7 \cdot 10^4 \text{ V/m}^2$  moet bedragen.

Resonante - verstrooiing - absorptie.

Het is gebruikelijk bij mössbauer spectrometers de transmissie van de absorber te meten als functie van de snelheid van bron t.o.v. absorber. Minder gebruik wordt gemaakt van de mogelijkheid de resonant-verstrooide straling te meten, dit is dus de emissie van de resonant geabsorbeerde straling.

Het voordeel van deze laatste methode, welke gebruikt moet worden wanneer met gammastraling van 100 tot 150 keV gewerkt wordt, is dat de achtergrondstraling relatief minder sterk is als in het geval van de absorptiemeting. De grootte van het signaal ten opzichte van de achtergrond is respectievelijk ongeveer 10 en 10% voor absorptie en verstrooiing, (L. 2.7), voor 14,4 keV straling.

De verhouding resonant- niet resonant-verstrooide straling is energie onafhankelijk en wordt gegeven door (L. 2.7).

$$M/R = 4,25 \cdot 10^{10} \cdot P(\emptyset) \cdot \text{aff! } E_{\gamma} / (m_0 c^2 \cdot Z^3 (1 + \alpha)) \quad *) \quad 2.15$$

Voor de 14,4 keV straling van  $\text{Fe}^{57}$  vinden we met  $f = f' = 0,8$   $M/R = 9$ .  
Voor de 136 keV straling van  $\text{Fe}^{57}$  vinden we met  $f = f' = 5,4 \cdot 10^{-4}$   
 $M/R = 4,1 \cdot 10^{-3}$ .

#### Coïncidentie metingen.

Wanneer het mössbauerspectrum van de 14,4 keV straling wordt gemeten, levert een coïncidentie meting met de daaraan voorafgaande 122 keV geen verbetering aangezien de achtergrond hoofdzakelijk wordt bepaald door de niet resonant geabsorbeerde resp. gereflecteerde straling. Deze niet "resonante" straling geeft dezelfde coincidenties als de resonant geabsorbeerde resp. gereflecteerde straling.

Wanneer mössbauereffect metingen in het geval van de resonante verstrooiings-experimenten waarschijnlijk wel zin aangezien de achtergrond straling dan bepaald wordt door de coïncidenties tussen niet resonant verstrooide 120 keV en de al dan niet resonant verstrooide 14,4 keV straling voor zover ze onder dezelfde hoek (gebied) gereflecteerd worden.

#### Vergelijking n.m.r.-Mössbauereffect.

- Kernspinresonantie (n.m.r.) is zowel bij het onderzoek van vaste stoffen als vloeistoffen te gebruiken, Mössbauereffect alleen voor vaste stoffen.
- N.M.R. is een gevoeliger methode voor het meten van inwendige velden dan het Mössbauereffect.

Het oplossend vermogen van kernspinresonantie wordt namelijk niet beperkt door de veldinhomogeniteit.

- Het aantal isotopen waaraan gemeten kan worden is bij het Mössbauereffect aanzienlijk kleiner dan bij n.m.r.
- Daartegenover is een Mössbauerspectrometer gemakkelijker te gebruiken voor de verschillende isotopen met hun magnetische dipool en elektrische quadrupool splitsing terwijl bij een n.m.r. spectrometer daar een zeer groot frequentiegebied voor nodig is.

\*) zie blz.9

- Met het Mössbauereffect kan quadrupoolsplitsing worden gemeten op ker-  
nen welke in de grondtoestand geen, maar in de aanslagtoestand wel een  
quadrupoolmoment hebben (zoals b.v.  $\text{Fe}^{57}$ ).
- Voor het Mössbauereffect zijn geen kristallen nodig, daartegenover geeft  
het geen informatie over de richting van de veldsterkte in het rooster.

De bron.

Beschikbaar is momenteel een  $\text{Co}^{57}$  bron. Het cobalt is gediffundeerd in pa-  
ladium ( $\varnothing$  8mm). Het cobalt vervalt met een halfwaarde tijd van 270 dagen  
tot de 136 keV toestand van  $\text{Fe}^{57}$  door k-vangst met neutrino emissie.

Fig. 2.6. geeft het verval schema van  $\text{Fe}^{57}$  waarbij de 14,4 keV straling  
dus gebruikt wordt voor de mössbauer effect metingen.

Opgemerkt zij nog dat  $\text{Fe}^{57}$  voor 2,2% in natuurlijk ijzer voorkomt.

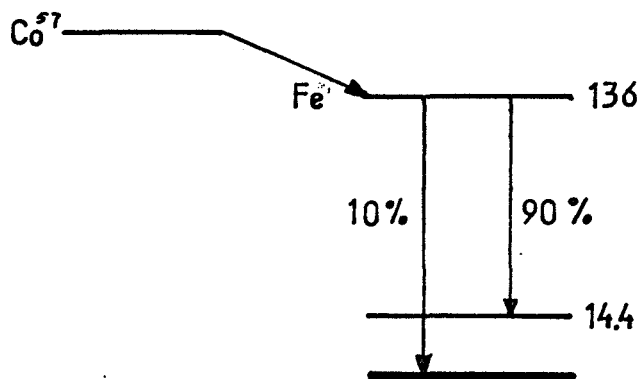


fig. 2.6. verval schema  $\text{Fe}^{57}$ .

---

\*) hierin is  $M/R$  de verhouding mössbauer-rayley-verstrooiing;  
a het percentage  $\text{Fe}^{57}$  in ijzer  
 $E_0$  de energie van de gammastraling  
 $m_0 c^2$  rustenergie van het electron  
z het atoomnummer  
de interne conversiecoëfficiënt.

### III. Spectrometer met constante snelheid.

#### Aandrijvingsmechanisme.

Het mechanisme systeem met behulp waarvan de bron een constante snelheid t.o.v. de absorber wordt gegeven (afwisselend positief en negatief) is naar het ontwerp van prof. dr. J.J. van Loef. Met uitzondering van een aantal details wordt eenzelfde opstelling gebruikt bij het natuurkundig laboratorium der N.V. Philips en bij het Reactor Centrum in Delft.

Het principe is weergegeven in fig. 3.1. Een lineaire functieschijf roteert eenparig, aangedreven door een synchroon motor (500 omw. per min. Papst HSM 4280) via een verdragingskastje (1:18). Over de functieschijf glijdt een teflon pin, verbonden aan een uiteinde van een lineaal. Het andere uiteinde van het lineaal is scharnierend bevestigd.

De snelheid ter plaatse  $x$  van het lineaal is  $x/4$  mm/sec. ( $x$  in mm).

De beweging ter plaatse  $x$  wordt met behulp van twee zuigers en een korte olieleiding overgebracht naar de bron welke op de tweede zuiger bevestigd is.

Het lineaal met de aandrijving is gemonteerd op een slede welke t.o.v. de eerste zuiger verschoven kan worden waardoor  $x$  en daarmee de snelheid gevarieerd kan worden van 0 tot 100 mm/sec. (van 0 tot 200 bij het dubbele toerental van de motor).

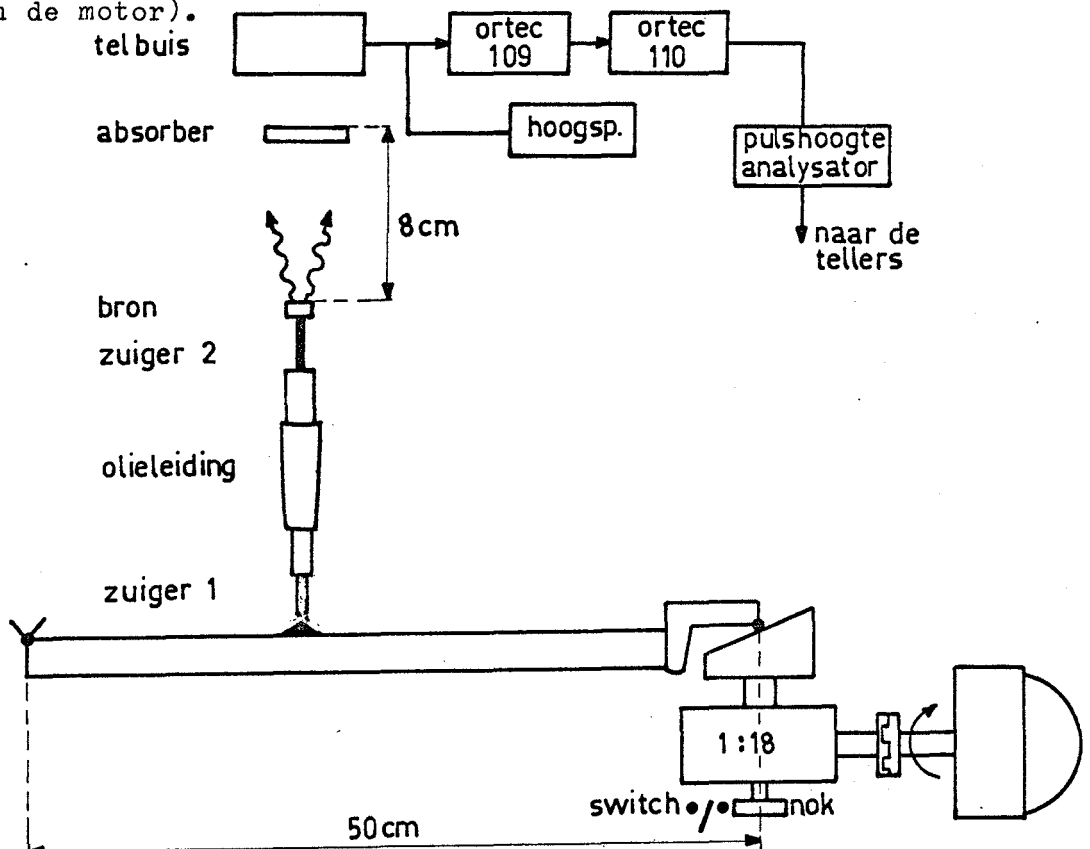


fig. 3.1. Principe van de constante snelheidsspectrometer.

Detectie gamma straling.

De gamma straling wordt gedetecteerd met behulp van een proportionele telbuis (Xenon met methaan, Reuter Stokes R.G. 30 A). De telbuis wordt gebruikt met een spanning van ongeveer 2090 volt.

Om de verliezen (capacitief) van het signaal zo klein mogelijk te houden is de voorversterker (Ortec logac) direct op de telbuis aangesloten. Het signaal van de voorversterker wordt naar de lineaire versterker (Ortec 410) gevoerd waarna een puls-hoogte-analysator het 14,4 keV signaal geselecteerd uit het spectrum waarin ook een 6 keV röntgenlijn van het ijzeratoom en een 22 keV röntgenlijn van paladium voorkomen. (Zie grafiek bijlage I).

Registratie 14,4 keV signaal voor positieve en negatieve snelheid.

In fig. 3.2 is het overzicht gegeven van de schakeling waarmee de impulsen van de 14,4 keV quanten uit de puls-hoogte-analysator worden geteld. Er zijn drie tellers; twee tellen de gammastraling respectievelijk in de perioden waarin de snelheid positief en negatief is, de derde telt het aantal perioden waarin de twee tellers tellen.

Aangezien direct na het omkeerpunt de snelheid niet goed is (de punt van de functieschijf is iets afgeplat om de beweging gelijkmatig te laten verlopen) wordt het tellen iets later begonnen. Om de gemiddelde afstand bij positieve en negatieve snelheid gelijk te houden wordt het tellen ook iets eerder gestopt. De teltijd wordt bepaald door de schakeling TdV.

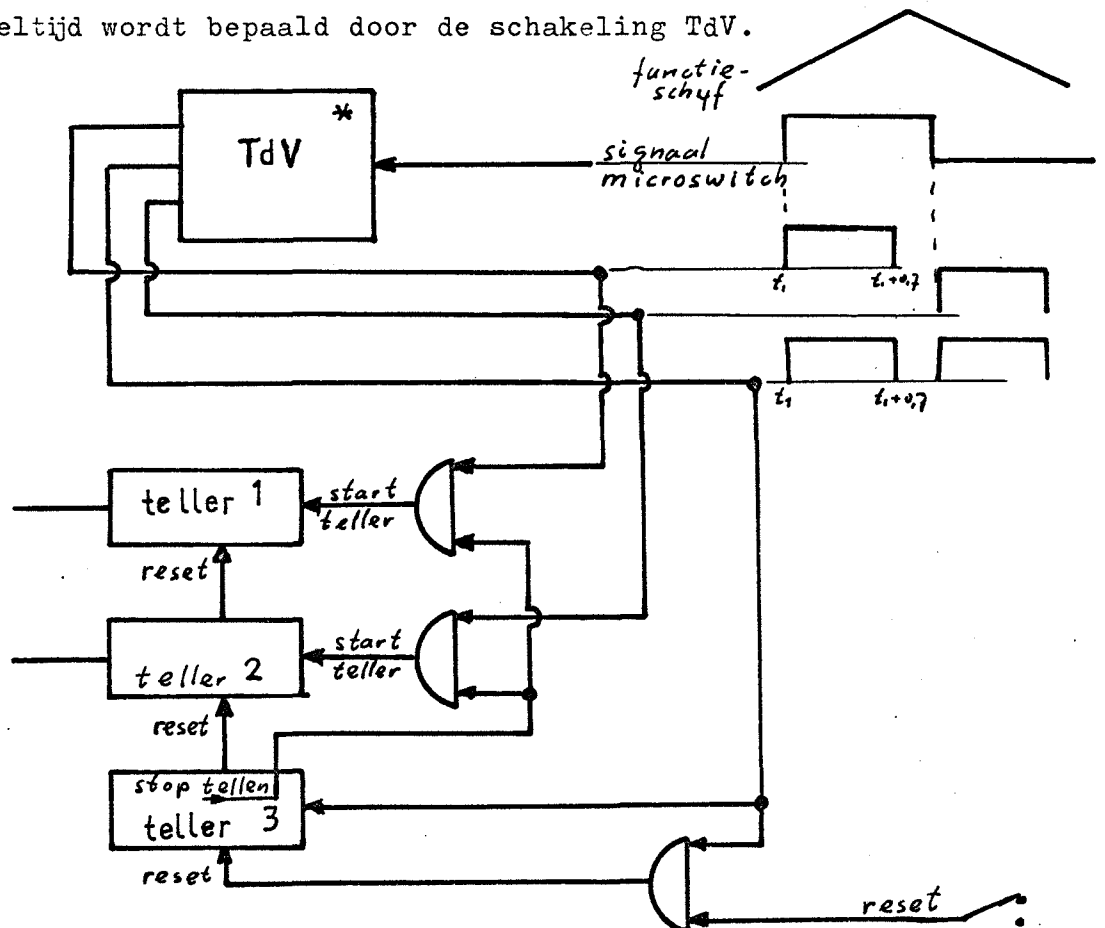


fig.3.2 registratie 14.4 keV signaal

Met behulp van een nok wordt een microswitch steeds iets na het omkeren van de snelheidsrichting omgeschakeld op tijdstip  $t_1$ . Hierdoor krijgen afwisselend de ingangen 1 en 2 een positieve spanning (4 volt). De uitgangen 1' en 2' van TdV geven dan een blok van 4 volt gedurende 0,7 sec gedurende respectievelijk positieve snelheid en negatieve snelheid. Uitgang 3' geeft het somsignaal van 1' en 2'. Wanneer teller 3 een even aantal van deze blokken heeft geteld worden de tellers 1 en 2 gestopt. De meting bij één snelheid is dan klaar. Nadat een nieuwe snelheid is ingesteld op het lineaal kan met een drukschakelaar de tellers worden 'reset' en daarmee het tellen hervat. Met behulp van een poortschakeling wordt voorkomen dat tijdens een telperiode het tellen wordt hervat.

#### Resultaten.

In de grafiek van bijlage II is het spectrum van een ijzer folie weergegeven. De plaats van de absorptielijnen komt overeen met metingen aan eenzelfde ijzerfolie verricht door dr. J.S. van Wieringen en J.G. Rensen op het Nat. Lab. der N.V. Philips, de lijnen zijn echter ruim 10% breder. (Bijlage IV). Deze verbreding wordt waarschijnlijk veroorzaakt door trillingen in de opstelling.

In de grafiek van bijlage IV is een spectrum van  $K_3Fe(CN)_6 \cdot 3H_2O$  weergegeven zoals opgenomen met behulp van de constante snelheidsspectrometer. We vinden een lijnbreedte van 0.27 mm/sec.

#### Mogelijke verbeteringen.

Behalve een eliminatie van bovengenoemde trillingen wordt overwogen over te gaan op een scintillatie teller voor de detectie van de gammastraling. Voor een regelmatig gebruik van de spectrometer is het wenselijk de spectrometer te automatiseren zodat de verschillende snelheden automatisch worden ingesteld en de stand van de tellers 1 en 2 wordt geregistreerd.

#### IV. Spectrometer met "konstante" versnelling.

##### Principe.

De bron heeft ten opzichte van de absorber periodiek een b.v. positieve versnelling gedurende een tijd  $T$ .

In fig. 4.1. is de versnelling, de snelheid en de plaats als functie van de tijd weergegeven.

De snelheid in een klein interval  $t = T/N$  wordt constant beschouwd.

De gammastraling, welke tijdens een tijd  $\Delta t$  gedetecteerd wordt,

wordt geteld in teller  $n$ . Op deze wijze krijgen we in  $N$  tellers de absorptie voor  $N$  verschillende snelheden  $v(n)$ .

In de praktijk wordt een periodieke beweging gebruikt waarbij de versnelling achtereenvolgens positief en negatief is zodat de in fig. 4.1. weergegeven grootheden moeten worden vervangen door die van fig. 4.2.

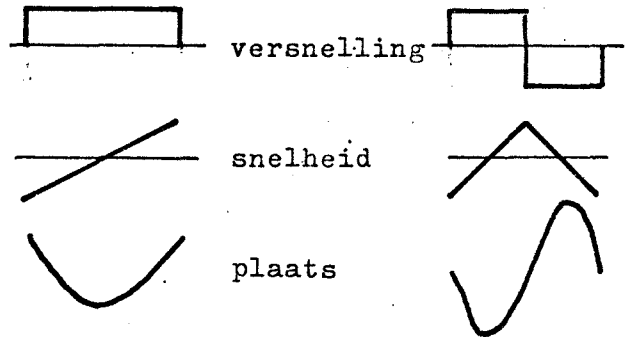


fig. 4.1.

fig. 4.2.

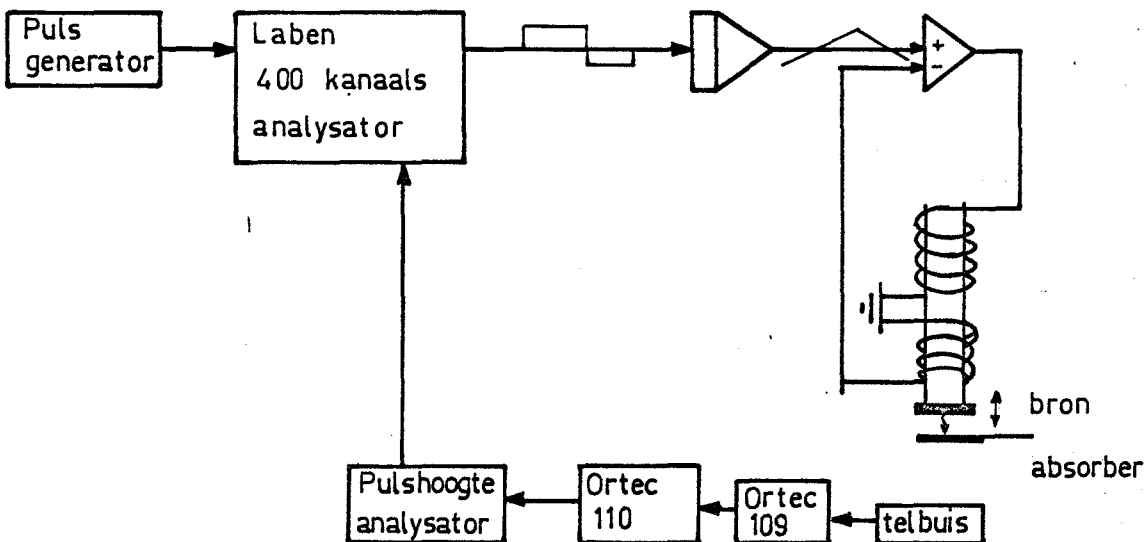


fig. 4.3. overzicht konstante versnellingspectrometer.



### Aandrijfmechanisme.

De bron is gemonteerd op een electro-mechanisch "kankeleit systeem" (dit basis element is gemaakt door de groep van Prof. dr. H. de Waard, R.U. Groningen). Dit systeem bestaat uit twee mechanisch gekoppelde spoelen bewegend in twee identieke magneetvelden.

De 'eerste' spoel drijft het systeem aan. De tweede spoel 'meet' de beweging. De spanning op deze tweede spoel wordt veroorzaakt door de fluxverandering en is daarmee een maat voor de snelheid. Deze gemeten spanning wordt vergeleken met de vereiste driehoeksspanning (de snelheid moet volgens een driehoek verlopen) en het verschil van deze twee wordt zoals dat bij servosystemen gebruikelijk is, gebruikt voor de aandrijving door de eerste spoel (zie fig. 4.3.).

### Detectie van de gammastraling.

De detectie van de gammastraling geschiedt analoog aan de detectie van de gammastraling bij de constante snelheidsspectrometer, door een telbuis, voorversterker, lineaire versterker en pulshoogte analysator. De uitgang van de pulshoogteanalysator geeft dus een pulsvormig signaal voor elk 14.4 keV gammaquant wat gedetecteerd wordt.

### Registratie van de gedetecteerde straling.

De gedetecteerde gammastraling moet nu zo worden geteld dat gedurende het  $n$ -de interval  $\Delta t$  (waarin de snelheid konstant wordt beschouwd) gedetecteerde straling voor elke periode bij elkaar wordt opgeteld.

Dit tellen geschiedt met behulp van een multi channel analyser welke als multi scaler gebruikt wordt. Dit betekent dat er 400 geheugenplaatsen beschikbaar zijn voor het tellen van de pulsen.

Achtereenvolgens worden nu deze 400 geheugenplaatsen "open" gezet door een signaal van een pulsgenerator. Dat betekent dat achtereenvolgens in elk der 400 kanalen gedurende  $\Delta t$  seconden de gammastraling wordt geteld.

De multi channel analyser geeft op een uitgang 0 volt gedurende de tijd dat in de eerste 200 kanalen wordt geteld en -6 volt gedurende de tijd dat in de tweede 200 kanalen wordt geteld. Dit signaal wordt geïntegreerd en daarmee is de driehoeksspanning verkregen, waarmee het snelheidssignaal overeen moet komen (zie aandrijvingsstelsel). Tevens is hiermee bereikt dat de tellers gesynchroniseerd zijn met de snelheid het snelheidssignaal komt van de tellers.

We hebben dus nu in de eerste 200 kanalen het spectrum corresponderend met een positieve versnelling en in de tweede 200 kanalen hetzelfde spectrum corresponderend met een negatieve versnelling.

De 400 geheugenplaatsen kunnen worden uitgelezen met behulp van een pons (Teletype) of met een X'Y-schrijver.

### Vergelijking konstante versnellings- snelheidspectrometer.

De voordelen van de konstante versnellingspectrometer zijn:

- er kunnen grotere snelheden worden verkregen hetgeen voor metingen aan sommige isotopen noodzakelijk is.
- de opstelling behoeft geen automatisering aangezien direct bij verschillende snelheden wordt gemeten.
- er kan gemeten worden met een bron waarom de halfwaarde tijd groot is t.o.v. 0,1 sec doch niet groot t.o.v. de totale meettijd.

De nadelen van de constante versnellingspectrometer t.o.v. de konstante snelheidspectrometer zijn:

- de spectrometer moet geijkt worden b.v. met een bekend apparaat als absorber terwijl bij de konstante snelheidspectrometer de snelheid bekend is.
- de konstante versnellingspectrometer eist een wat grotere investering (zie bijlage VII).

### Resultaten.

In de grafiek van bijlage V is een ijkcentrum van ijzer folie weergegeven. Hieruit bleek dat de onderlinge afstand der absorptie lijnen overeenkomt met het door van Wieringen & Rensen gemeten spectrum.

De lijnbreedte is echter evenals bij de konstante snelheidsapparatuur 5 tot 10% groter.

### Mogelijke verbeteringen.

De verschil-versterker behoeft nog enige verbetering. Door een grotere terugkoppeling zal het verschil signaal kleiner worden, tot nu toe wordt de terugkoppeling beperkt door een resonantie die bij sterkere terugkoppeling optreedt.

Ook het opstellen op een trillingsvrije ondergrond geeft wellicht een verbetering van de lijnbreedte.

Momenteel wordt nog gewerkt aan een schakeling waarmee het mogelijk zal zijn b.v. alleen buitenste lijnen te meten in de beschikbare 200 kanalen waardoor het aantal meetpunten per absorbtie lijn vergroot kan worden.

V. De Cryostaat.

Voor metingen aan absorbers bij lage temperaturen is een cryostaat ontworpen.

Aangezien de gammastraling door glas geabsorbeerd wordt moet met b.v. berilium vensters gewerkt worden. Glas metaal verbindingen zijn alleen mogelijk met covar wat echter ferromagnetisch is. Daarom is gekozen voor een metalen cryostaat.

Constructie.

In fig. 4.1. is het principe weergegeven. Het onderste gedeelte van de cryostaat, waar het preparaat zich bevindt, is smaller geconstrueerd om een uitwendig magneetveld te kunnen aanbrengen.

Het preparaat wordt onder aan de heliumruimte bevestigd. De heliumruimte is, met uitzondering van het smallere gedeelte, van de buitenmantel (kamertemperatuur) afgeschermd door de stikstofruimte.

Rond het smallere gedeelte is een koperen warmtestralingsscherm aangebracht. Dit scherm staat in warmtecontact met de stikstofruimte. In dit scherm bevinden zich twee gaten (ter hoogte van de vensters en het preparaat) welke door middel van dun aluminiumfolie dat op het scherm wordt geplakt, zijn afgeschermd.

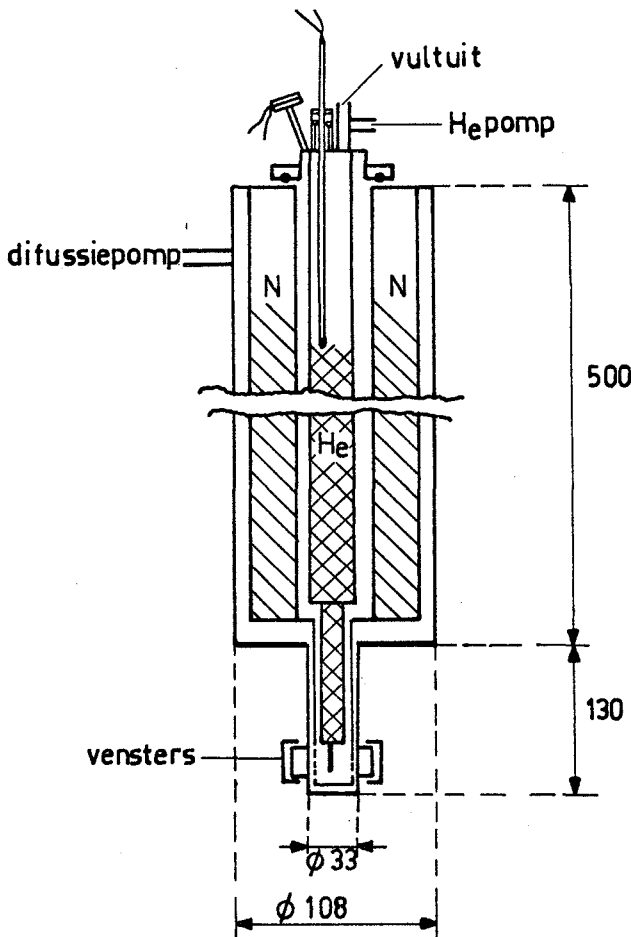


fig. 51 cryostaat

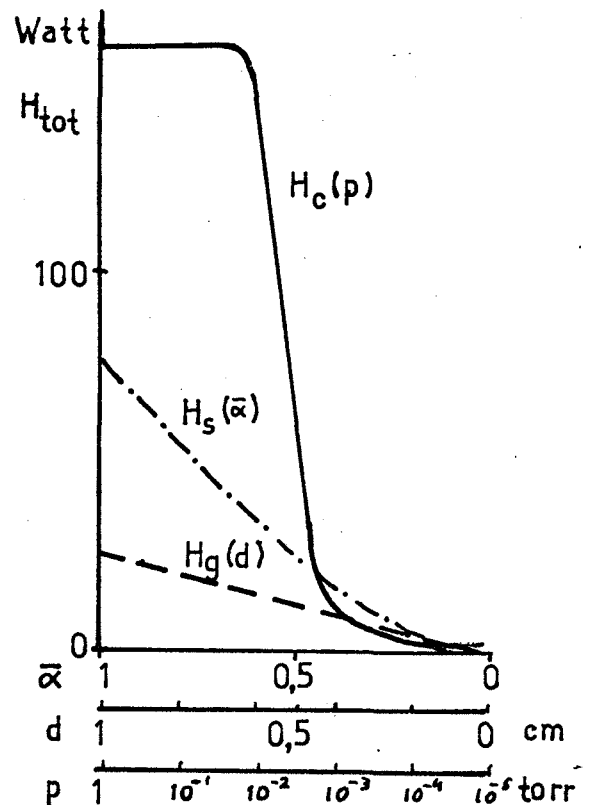


fig. 52 warmte lek

Enige details van de constructie.

- Er is slechts één vacuumruimte; dat betekent dat bij het wisselen van het preparaat alle tussenruimten weer vacuum gepompt moeten worden. Daar staat echter tegenover, dat hierdoor vensters bij lage temperaturen vermeden zijn.
- De wanden van de stikstofruimte zijn van roestvrij staal (316). Aanvankelijk is getracht deze cilindervormige wanden te construeren met behulp van 0,5mm roestvrij stalen plaat. Deze plaat werd rond gezet, gelast, rond geklopt en electrolytisch gepolijst. Gebleken is echter dat er lekken bleven op de lasnaad en in de wanden zelf, deze laatste waarschijnlijk mede veroorzaakt door het electrolytisch polijsten. Uiteindelijk zijn de wanden verkregen uit roestvrij stalen pijp (5mm dik) welke wordt afgedraaid tot een dikte van 0,5mm. Aan de uiteinden van de pijpen is de oorspronkelijke dikte van de pijp gehandhaafd. Hierdoor blijft de pijp aan de uiteinden beter rond waardoor de soldeerverbindingen beter gemaakt kunnen worden.
- De wand van de heliumruimte is van nieuw-zilver (0,1mm dik) pijp. De helium inhoud is  $240 \text{ cm}^3$ . Het verdient aanbeveling de mogelijkheid deze inhoud te vergroten te bezien. (er is ruimte voor, doch er was geen nieuw-zilveren pijp beschikbaar).
- Alle metaalverbindingen zijn gesoldeerd (met tin).
- De vensters voor de gammastraling zijn van aluminium, berilium of mylar, uit de grafiek van bijlage III blijkt de absorptie van de verschillende materialen welke als venster gebruikt kunnen worden. De afsluiting van de vensters geschiedt met behulp van rubber O-ringen zoals geschetst in fig. 5.3.

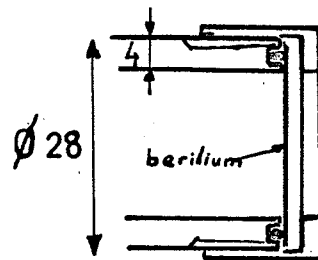


fig. 5.3. venster

- Het niveau van de vloeibare stikstof in de stikstofruimte kan gemeten worden met behulp van een dunne nieuw-zilveren pijp. Het niveau van de vloeibare helium kan bepaald worden met behulp van een koolweerstand welke onder aan een nieuw-zilveren pijp is bevestigd, de weerstandsverandering kan met een brug worden gemeten.
- In de grafiek van Bijlage I is tevens de absorptie van de gammastraling door de vensters aangegeven.
- De heliumruimte wordt met behulp van drie nylon punten gecentreerd t.o.v. het koperen warmtestralingsscherm. Het warmte inlek via deze punten is naar schatting  $10^{-2}$  Watt. (Nylon is  $0,001 \text{ watt cm}/^\circ\text{K}$ ).

Schatting en bedragen van het warmtelek voor de stikstofruimte.

Het warmtelek is te onderscheiden in:

- verlies doer straling  $H_C$
- verlies door geleiding van de metalen wanden  $H_g$
- verlies doer geleiding van het "vacuum"  $H_v$ .

In fig. 5.2. is het warmtelek voor de stikstofruimte door deze drie mechanismen als functie van hun respectievelijke relevante grootheden weergegeven. Er wordt gewerkt met een vacuum van  $10^{-5}$  torr. Het warmtelek (door het vacuum) van de stikstofruimte is dan 0,2 Watt. De roestvrij stalen wanden zijn 0,5mm dik, hetgeen een lek van 1,3 Watt geeft.

De verdampingswarmte van de stikstof (2,25 liter) is 100 Watt.

Gebleken is dat de stikstof in ongeveer 18 uur verdampt is.

Hieruit volgt dan voor de gemiddelde absorptiecoëfficiënt voor de beide wanden  $\tilde{\alpha} = 0,13$ , waarbij de instraling aan boven- en onderzijde verwaarloosd is.

Warmtelek van de heliumruimte.

Aangezien nog slechts één maal helium in de cryostaat is geweest valt hierover nog weinig te zeggen.

Een probleem vormde toen nog de niveau-meting van het helium.

---

N.B. Bij de bouw van de cryostaat zijn adviezen verkregen van de sectie Lage Temperaturen door welke sectie tevens gastvrijheid en technische bijstand werd verleend.

VI Notitie's

1. Analyse van de meetgegevens

Om te komen tot een objectieve bepaling van het spectrum volgens de meetgegevens is een aanvang gemaakt met een algol-programma voor de EL-C-8 rekenmachine.

Een dergelijk programma zal bovendien noodzakelijk zijn voor een parameter-schatting in het geval dat de spectrumlijnen geheel of gedeeltelijk op elkaar vallen.

Het probleem van de analyse kan als volgt geformuleerd worden: gegeven N gehele getallen  $Y_i$ , elk met een standaardafwijking

$$Y_i;$$

gevraagd de parameters  $Y_0, m, a_j, b_j, c_j$  van de vorm

$$\sum_{i = -N}^N \sum_{j = 1}^m Y_0 \left( 1 - a_j \cdot b_j / \left( (i - c_j)^2 + b_j^2 \right) \right) \quad 6.1$$

In woorden:

- waar ligt het nulniveau (geen resonantie absorptie)  $Y_0$ ,
- hoeveel absorptielijnen zijn er ( m ),
- wat is de plaats, de breedte en de diepte van deze absorptielijnen (resp.  $c_j, b_j$  en  $a_j$ ).

Bepaling van  $Y_0$

Uitgaande van het feit dat de absorptielijnen onder het nulniveau liggen (zie bijvoorbeeld grafiek bijlage II) en de spreiding bekend is, kan onder de veronderstelling dat het nulniveau horizontaal is  $Y_0$  als volgt bepaald worden:

- zoek het hoogste punt  $Y_{max}$ ;
- kies  $Y_0 = Y_{max}$ ;
- verminder  $Y_0$  in stapjes van  $1/10 * \sqrt{Y_{max}}$ ;
- bereken na elk stapje voor de punten  $Y > Y_0$  de kwadratische afwijking tot  $Y_0$ :

$$\sum_{i=0}^L \frac{(Y_i (Y > Y_0) - Y_0)^2}{L - 1} \quad 6.2$$

- vergelijk deze kwadratische afwijking met de te verwachten spreiding in  $Y_0$ :

$$\sqrt{Y_0} \cdot \sqrt{1 - 1/L} \quad 6.3$$

- wanneer beide spreidingen gelijk zijn stop met stapjes nemen en neem als schatting van het grondniveau de laatst gekozen  $Y_0$

Bij een test met behulp van een serie a-selectieve getallen uit de normaal-verdeling bleek dat het op deze manier bepaalde gemiddelde binnen de spreiding afweek van het normaal berekende gemiddelde.

Het gebruik van de F-toets voor spreidingen in plaats van gelijkstellen geeft een minder goed resultaat. Het proces stopt dan te vroeg, aangezien de F-toets een verhouding tussen de spreidingen van 1,3 al als goed accepteert.

Bepaling van het aantal absorptielijnen

Dit kan geschieden door het aantal groepen punten kleiner dan  $Y_0 - u \cdot \sqrt{Y_0}$  te bepalen. Het probleem hierbij is dat wanneer  $u$  te klein wordt gekozen, pieken welke een beetje overlappen als één piek worden beschouwd, terwijl wanneer  $u$  te groot wordt gekozen de kleinere pieken tot de achtergrond worden gerekend. De oplossing hiervoor zal moeten zijn, dat begonnen wordt met een kleine  $u$ , bijvoorbeeld  $u = 2$  en dat voor de delen van het spectrum met overlap de  $u$  wordt vergroot.

Bepaling van de parameters  $a_j, b_j, c_j$

Een eerste benadering kan worden gevonden door een polynoom-aanpassing (combinatie van de standaardprocedures ORTHOPOL, YAPPROX, POLCOEF) per groep tot één "piek" behorende punten.

Wanneer het een dubbele piek is, blijkt dat onder andere uit de graad van de optimale aanpassingspolynoom.

Wanneer het een enkelvoudige piek is kan een kleinste kwadraat aanpassing worden verkregen door de vergelijkingen:

$$(y_i - 1 + a \cdot b / ((c - i)^2 + b^2)) = 0 \quad 6.4$$

op te lossen (met behulp van de standaardprocedures CROUTDECOMPOSITION EN CROUTSOLUTION).

### Programma Delft

Momenteel wordt gewerkt aan een aanpassing voor de X - 8 van een programma van het reactorinstituut Delft, waarbij voor een 2,4 en 6 lijnenspectrum de parameters aan de hand van beginschattingen worden bepaald door middel van iteraties.

Te zijner tijd is het willicht mogelijk door een combinatie van beide programma's te komen tot een bevredigende analyse van de spectra.

## 2. Enige meetresultaten

### Ferri acetaat

Er zijn een aantal metingen verricht aan  $Fe (H_3 C_2 O_3)_3$  "ferri acetaat". Het bestaan van deze stof is echter (voor zover ons bekend) nog niet aangetoond (L. 6.1)

Aanvankelijk werd getracht deze stof te krijgen met de oplossing:  $3 K (H_3 C_2 O_2)_3 + Fe Cl_3 \cdot 6 H_2 O$  waaruit het K Cl werd neergeslagen met alcohol.

Het ijzergehalte bedroeg echter slechts 40 % van het te verwachten gehalte in  $Fe Ae_3$  terwijl een röntgen analyse (debije - scherrer) aanleiding gaf tot de veronderstelling dat er niet alleen K Cl maar ook  $Fe Cl_3$  was achtergebleven.



Vervolgens is uitgegaan van  $\text{Fe}(\text{OH})_3 + 3 \text{H}_4 \text{C}_2\text{O}_2$ . Van de verkregen stof klopte het ijzergehalte redelijk (24,9 in plaats van 24 %), het koolstofgehalte slecht (30 in plaats van 25 %) en het waterstofgehalte matig (3,8 in plaats van 4 %).

Röntgen opnamen gaven geen uitsluitel aangezien het röntgenspectrum niet bekend is.

Een kernspin resonantie meting gaf aan dat de stof bij 2 °K nog paramagnetisch is.

In de grafiek van bijlage VII is het Mössbauer spectrum aangegeven.

We zien twee bijna samenvallende absorptielijnen waarvan nog niet duidelijk is of ze afkomstig zijn van

- twee verschillende isomeershifts doordat of de stof in feite een mengsel is van 2 stoffen of de stof twee niet equivalente ijzerplaat-  
sen heeft, waarbij de rechtse aanleiding zou geven tot de veronder-  
stelling dat er een 2-waardig ijzer, ion is.
- een quadripoolsplitsing, hoewel deze dan vrij groot is voor een  
3-waardige ion.

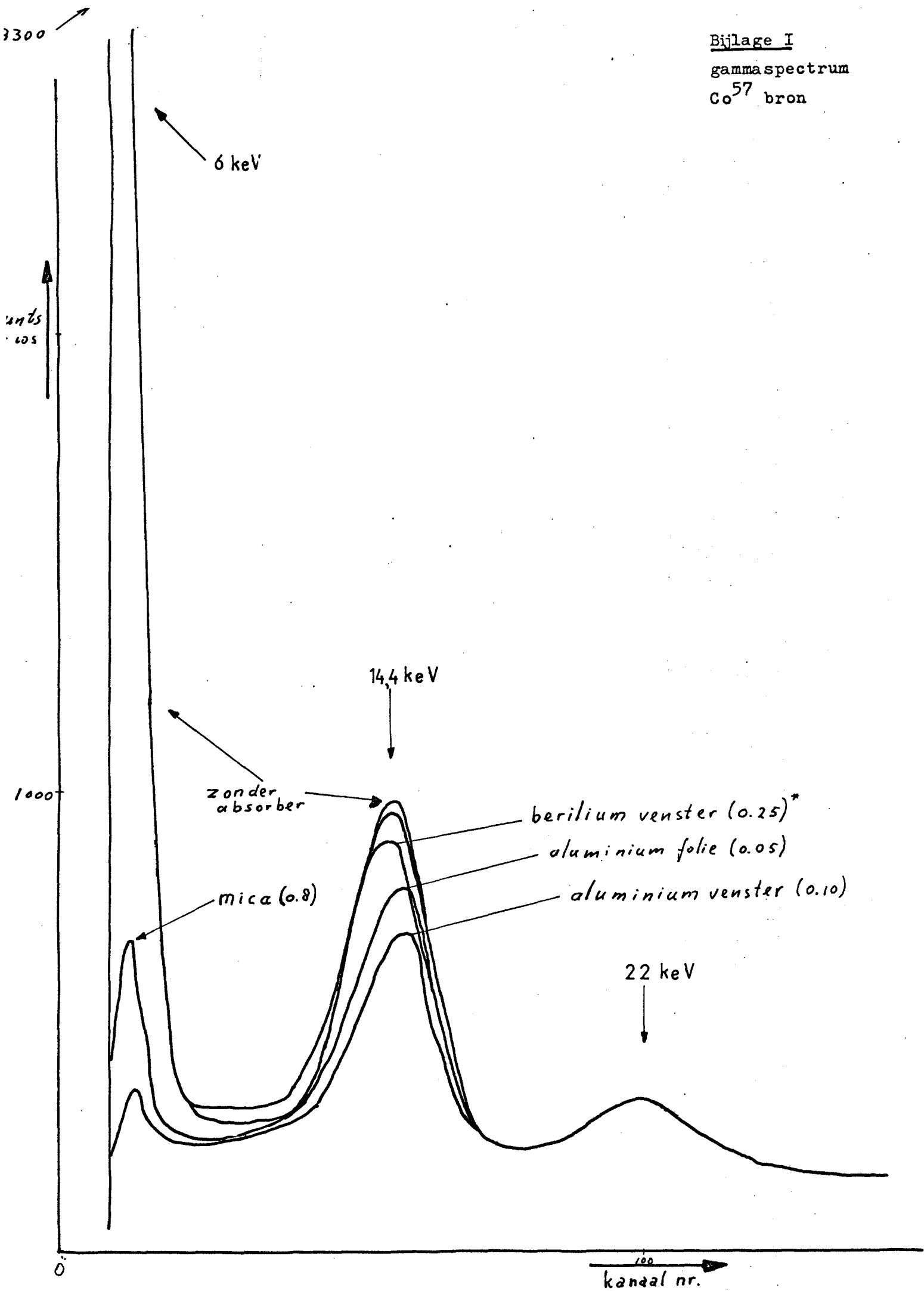
Het meest voor de hand liggend zou zijn een mössbauerspectrum op te nemen beneden een eventueel curie of neeël punt. Zoals boven al is opgemerkt treedt boven 1°K geen ordening op zodat op deze wijze geen uitsluitel te verkrijgen is, een magneetveld ter plaatse van de kern zou nl. in het geval van twee isoneershifts een dubbel zeslijnenspectrum geven en in het geval van een quadrupool splitsing een verschuiving van de buitenste lijnen t.o.v. de binnenste.

Opmerking: Het "ijzeracetaat" is gemaakt met medewerking van resp. Mej.Kuyer sectie anorganische chemie. De röntgenanalyse is verricht door ir. H.Thijssen.

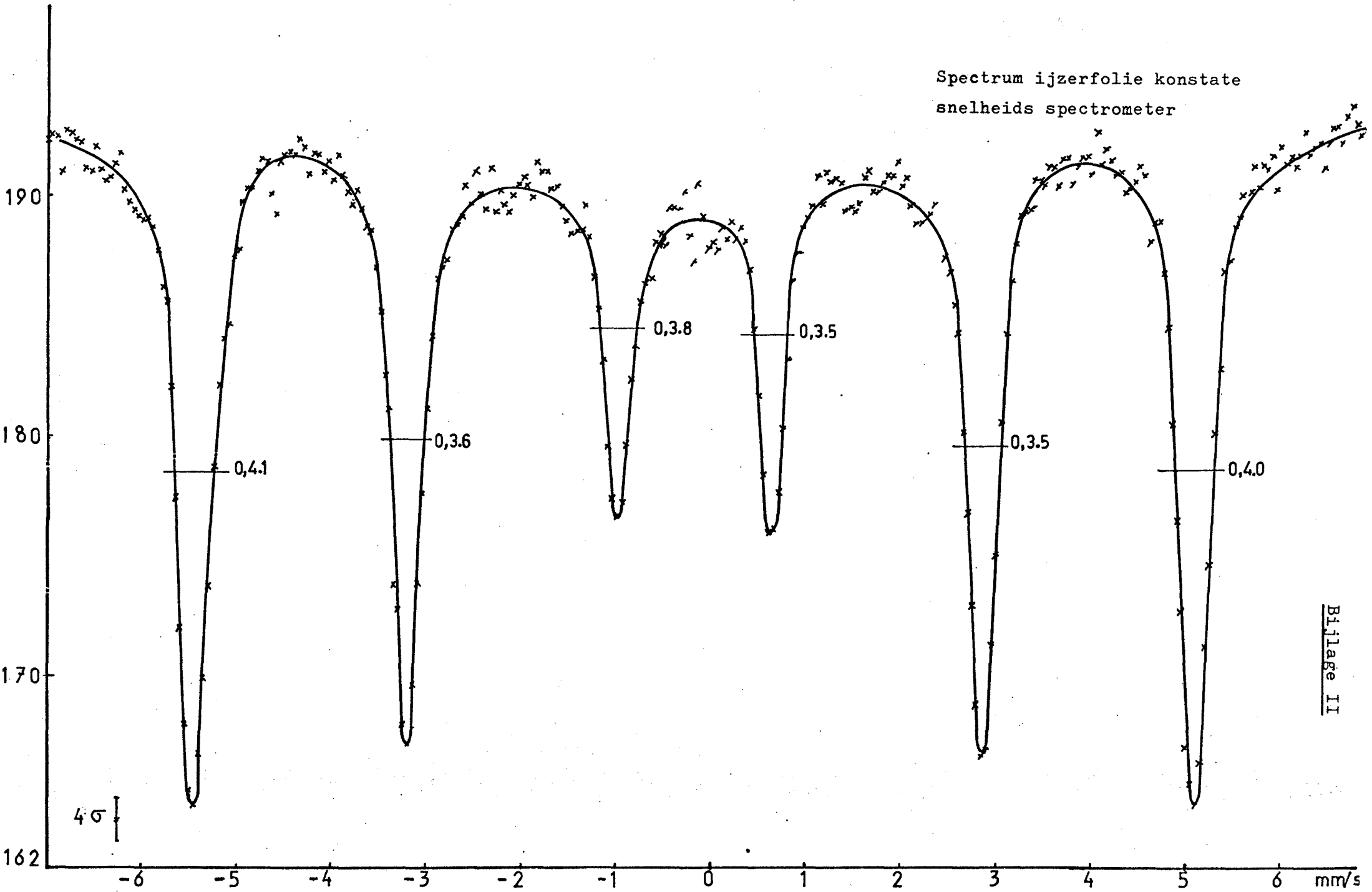
Litteratuur

- L.2.1 R. Mössbauer, Naturwissenschaften 45 (58) 538
- L.2.2 R.S. Preston, Phys. Rev. 128 (62) 2297
- L.2.3 G.W. Ludwig, Phys. Rev. 117 (60) 1286
- L.2.4 A.J. Freeman, Proc. Sec. Int. Conf. on Mössbauer effect blz. 117
- L.2.5 R. Ingalls, Phys. Rev. 133A (64) 787
- L.2.6 R. Sternheimer, Phys. Rev. 130 (63) 1423
- L.2.7 P. Debrunner, Application of Mössbauer effect, int. atom. energy agency 1966. blz. 58.
- L.6.1 Gmelin no. 59, B 3, blz. 521.

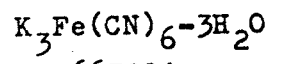
Bijlage I  
gamma spectrum  
Co<sup>57</sup> bron



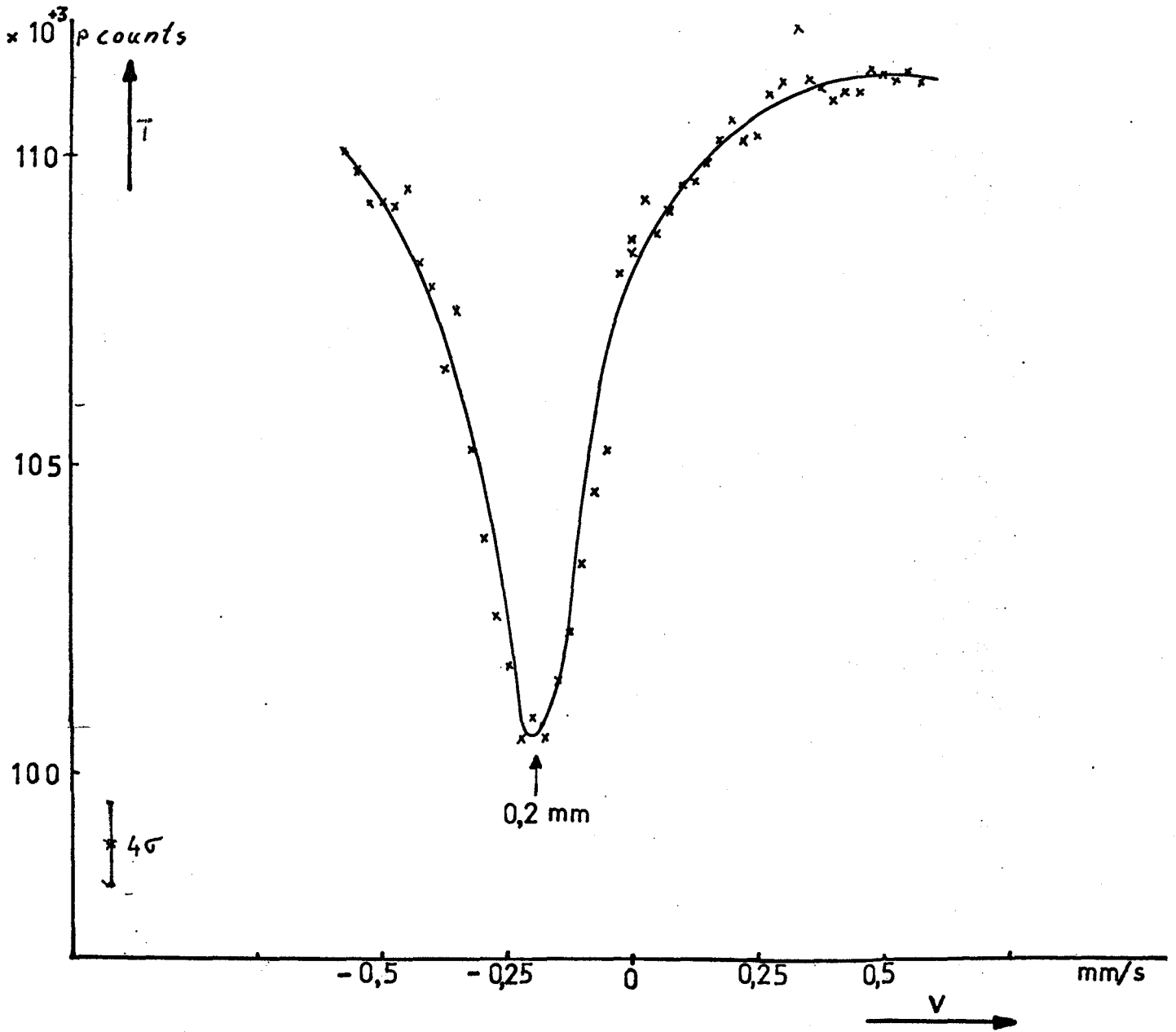
Spectrum ijzerfolie konstate  
snelheids spectrometer



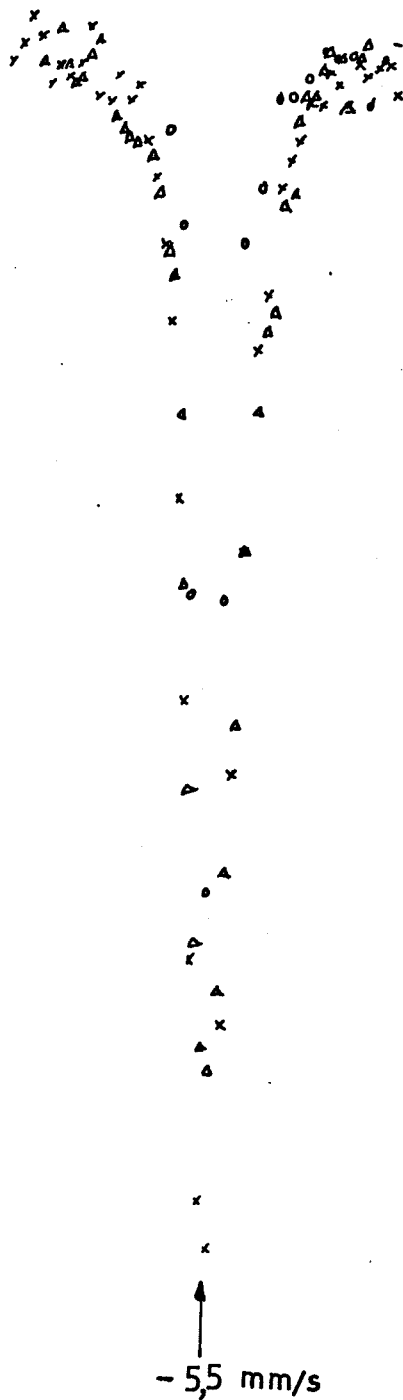
mössbauerspectrum



070667001



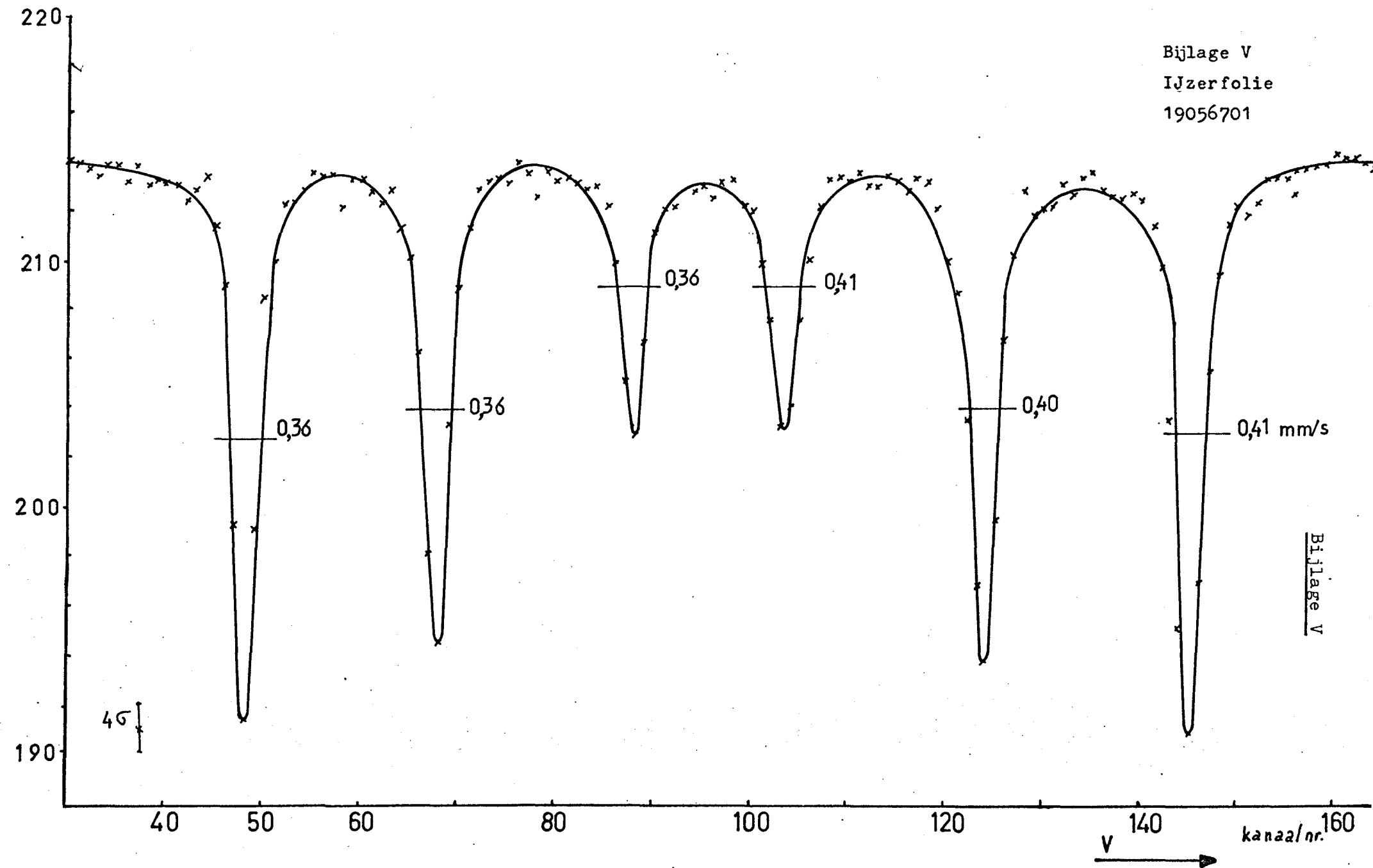
<sup>3</sup>  
10 counts  
220 ———



x volgens v.Wieringen (Philips)  
Δ konstante spelheids specrometer  
o konstante versnellings spectrometer

40 | \*

$\times 10^3$  counts



Schakelingen.


Logische schakelingen.


Voor het tellen van de gamma signalen zijn een paar schakelingen gemaakt, waarbij het volgende zij opgemerkt:

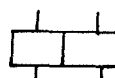
- Alle signalen zijn gelijkspannings signalen, dat betekent dat geschakeld wordt op het niveau en niet op de flank van een puls. Hierdoor is de kans op storingen kleiner.

- De schakeltijden moeten klein zijn t.o.v. 1  $\mu$  sec.

- Gebruik is gemaakt van:

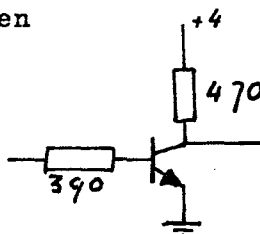
- motorola integrated circuits PC 848 clocked Flip Flop en PC 846 quand nandgates 

- fairchild integrated circuits L958 tiendeler   
 L914 gate  
 L926 J-k Flip Flop



- transistorschakelingen

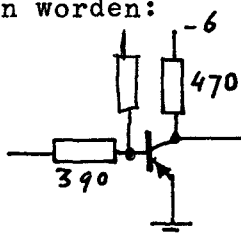
zoals de invertor



BSY 39 (afsnijfrequentie 350 Mc)

De voeding (en normaal) spanningen van bovengenoemde eenheden is 4Volt.

- Voor de ingangen van de multichannel analyzer zijn signalen vereist van -6 Volt met een stijgtijd kleiner dan 0,5  $\mu$ sec. Daarom is een invertor nodig waarvoor gebruikt kan worden:



2N3906 (afsnijfrequentie 400MC)

De schakeling T.d.V.

Deze schakeling is ontworpen door heer T. de Vries van de sectie kernfysica. Het principe is als volgt:

- op een positief signaal van de *microswitch* worden 80 clock pulsen afgeteld door de delers 10 en 8. Gedurende deze tijd komt het positief signaal op de uitgang.

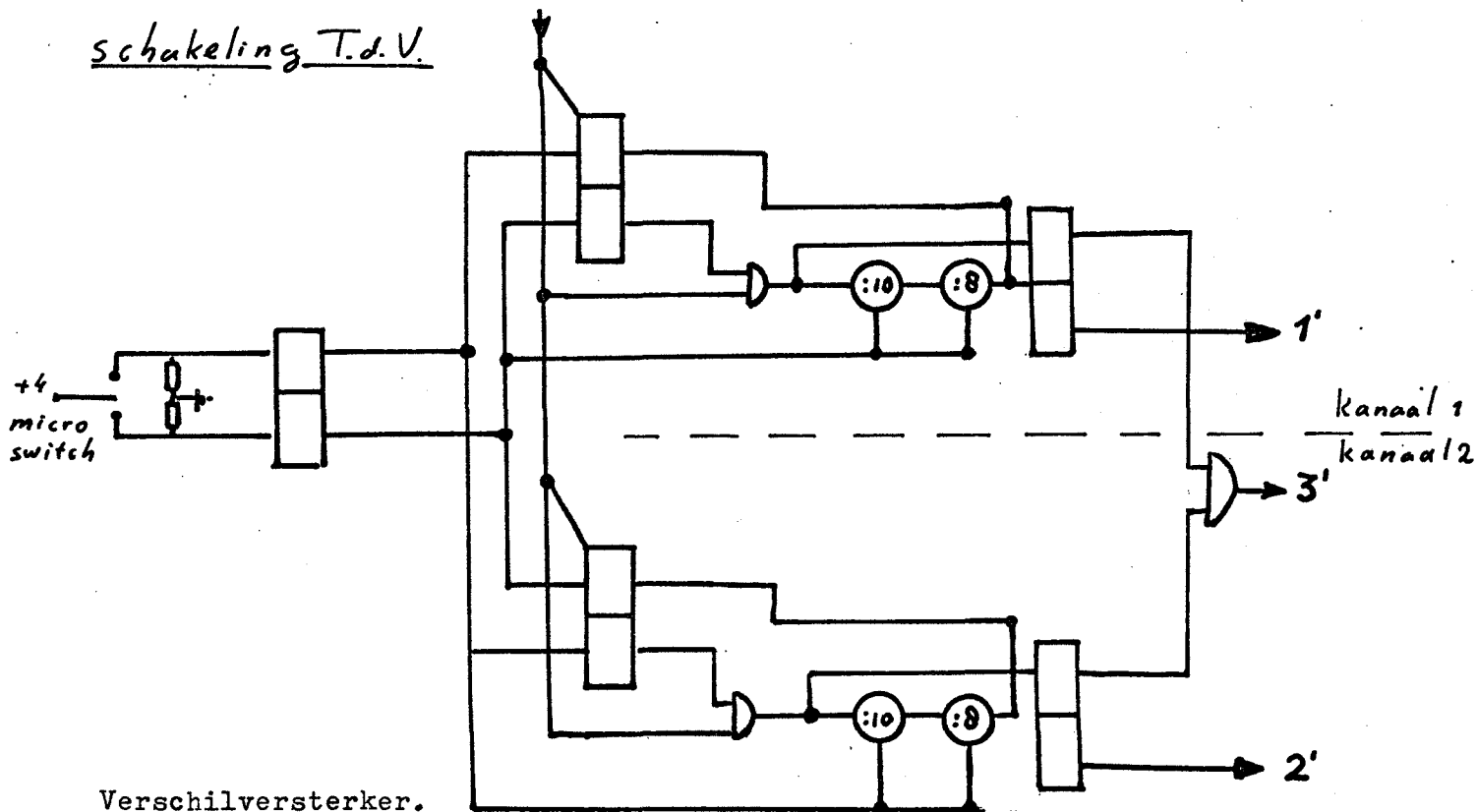


Dit geschiedt afwisselend in 2 kanalen ( een voor pos snelheid een voor neg snelheid, zie algemene beschrijving). Gedurende het tellen in het ene kanaal worden de delers van het andere kanaal reset.

- De clock-flip-flop

zorgt ervoor dat het ingangssignaal pas wordt doorgegeven op het moment dat er een clockpuls is, zodat geen fout wordt gemaakt wanneer het ingangssignaal aankomt tussen twee clock-pulsen.

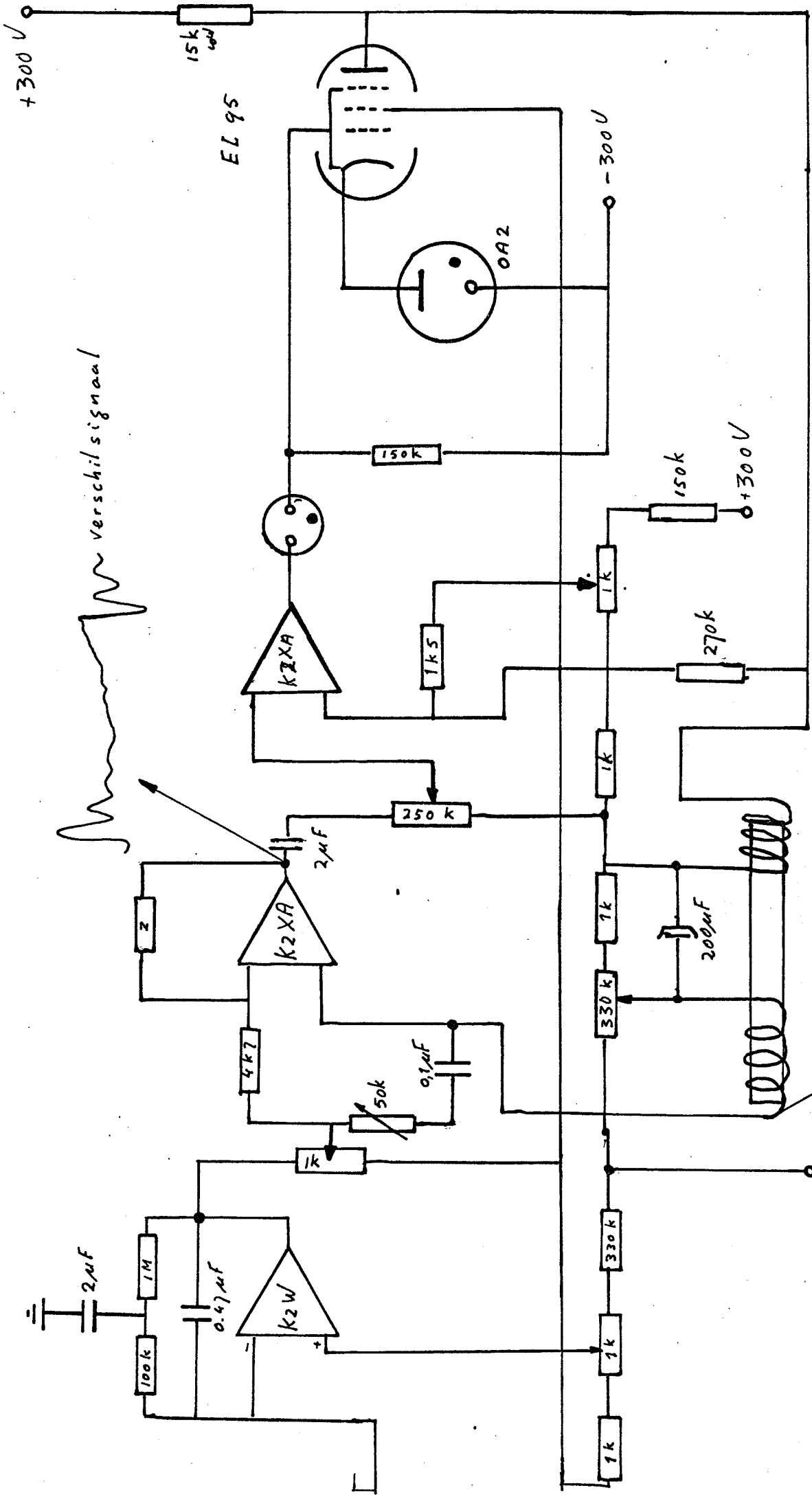
Schakeling T.d.V.



Verschilversterker.

In onderstaand figuur is het schema gegeven van de verschil versterker en integrator, behorende bij het "kankeleit" systeem van Groningen" (groep prof.dr. H. de Waard) tevens is aangegeven het "gemeten"- en het verschil-signaal tussen gemeten en vereiste "snelheid".

Zoals al opgemerkt treedt bij sterkere terug koppeling een resonantie op van 200 Hz.



verschil signaal

Verschil versterker

"meet" signaal

Investeringsen mössbauerspectrometers.

mössbauer spectrometer met constante snelheid

mechanische aandrijving	3250,-
versterkers, discrim., tellers, voeding, telbuis	29700,-
automatisering*)	pm
	<hr/>
	32950,-

mössbauerspectrometer met constante versnelling.

Multichannel analyser met ponsen**	43965,-
versterkers, discrim., voeding, telbuis	12375,-
electromechanisch aandrijfsysteem	2500,-
	<hr/>
	58840,-

\* voor een juiste vergelijking tussen de beide opstellingen is het redelijk de kosten welke een automatisering van deze spectrometer met zich mee zou brengen in rekening te nemen. Naar schatting zouden deze kosten 11.000,- bedragen hetgeen het totaal van de opstelling op 43950,- brengt.

\*\* Opgemerkt zij dat de multichannel analyser ook geschikt is voor andere toepassing b.v. door gebruik van de sampling mogelijkheid voor het opnemen van spectra bij n.m.r. en e.s.r.

---

cryostaat ongeveer f3000,-

Bijlage VIII  
mössbauerspectrum  
"ijzeracetaat"

