

Interner Bericht

DESY F41

HASYLAB 80/09

Oktober 1980

Beobachtung

reiner kohärenter Kernresonanzstreuung an  $^{57}\text{Fe}$

Experimente im Hinblick auf die Monochromatisierung  
der Synchrotronstrahlung mit Mößbauereffekt

Eigentum der	DESY	Bibliothek
Property of	DESY	Library
Zugang:	16. OKT. 1980	
Accession:		
Leihfrist:	7	Days
Loan period:		

von

Martin Mueller

**DESY behält sich alle Rechte für den Fall der Schutzrechtserteilung und für die wirtschaftliche Verwertung der in diesem Bericht enthaltenen Informationen vor.**

**DESY reserves all rights for commercial use of information included in this report, especially in case of apply for or grant of patents.**

**"DIE VERANTWORTUNG FÜR DEN INHALT  
DIESES INTERNEN BERICHTES LIEGT  
AUSSCHLIESSLICH BEIM VERFASSER."**

Beobachtung  
reiner kohärenter Kernresonanzstreuung an  $^{57}\text{Fe}$   
Experimente im Hinblick auf die Monochromatisierung  
der Synchrotronstrahlung mit Mößbauereffekt

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
des Fachbereichs Physik  
der Universität Hamburg

vorgelegt von  
Martin Mueller  
aus Kiel

Hamburg  
1980

Gutachter der Dissertation: Prof. Dr. E. Gerdau  
Prof. Dr. M. Harsdorff

Gutachter der Disputation: Prof. Dr. E. Gerdau  
Prof. Dr. C. Kunz

Datum der Disputation: 25. 9. 1980

Sprecher des  
Fachbereichs Physik und  
Vorsitzender des  
Promotionsausschusses: Prof. Dr. H. Lehmann

## Inhaltsverzeichnis

I. Einleitung	5	V. Vergütete Spiegel für streifenden Einfall	59
II. Problemstellung	6	A) Reflexion Vakuum – Medium und Medium – Medium	59
A) Grenzen konventioneller Mößbauerspektroskopie	6	B) Vergütung	63
B) Eigenschaften der Synchrotronstrahlung	7	C) Qualität der Unterdrückung für ideale Spiegel	69
C) Monochromatisierung der Synchrotronstrahlung	9	D) Apparatur zur Messung der elektronischen Reflektivität bei streifendem Einfall	74
D) Wirkungsweise eines Mößbauermonochromators	12	E) Messungen an mit Germanium vergüteten Eisenspiegeln	76
E) Auswahl eines Mößbauerisotops und des Monochromatisierungsprinzips im Hinblick auf Experimente bei DORIS	14	VI. Resonanzstreuung an vergüteten Eisenspiegeln bei streifendem Einfall	84
III. Theorie der Mößbauerstreuung	16	A) Einfluß der Kernstrelänge auf die Reflektivität	84
A) Allgemeine Beschreibung elastischer Photonstreuung	16	B) Beschränkende Einflüsse auf die Unterdrückungsfaktoren	87
B) Streuung an einem gebundenen Mößbauerkern	20	C) Apparatur zur Messung resonanter Reflektivitäten bei streifendem Einfall	88
C) Einfluß der Atomelektronen auf den Streuvorgang	24	D) Messungen an Ge-vergüteten $^{57}\text{Fe}$ -Spiegeln	89
D) Berechnung der Kernstrommatrizelemente	26	VII. Zeitverhalten der gestreuten Strahlung nach Anregung durch einen Synchrotronpuls und zeitdiskriminierender Detektor	101
E) Statistische Einflüsse auf die Strelänge	29	A) Allgemeines zum Zeitverhalten	101
F) Spezielle Eigenschaften der Strelänge für den 14,4 keV Übergang im $^{57}\text{Fe}$	30	B) Zeitverhalten nach reiner Kernstreuung bei streifendem Einfall	102
IV. Braggstreuung an dünnen $^{57}\text{Fe}$ -Einkristallen	36	C) Konzeption eines resonanzselektiven schnellen Detektors	106
A) Streuverhalten einer Netzebene	36	VIII. Ausblick	110
B) Braggstreuung an einem ausgedehnten Kristall	38	IX. Zusammenfassung	113
C) Nichtpolarisationsmischende Streuung an dünnen Kristallen	44	X. Literaturverzeichnis	114
D) Auswahl des Reflexes	46		
E) Apparatur für Messungen am Synchrotronstrahl von DORIS	48		
F) Messungen an Fe-Ag-Glimmer Systemen	52		
G) Messungen an Fe-AgKristall Systemen	55		

## I. Einleitung

In den letzten Jahren hat die Möglichkeit, Synchrotronstrahlung mit Hilfe der Mößbauerstreuung genannten kohärenten Kernresonanzstreuung zu monochromatisieren, sowohl auf experimentellem wie auch auf theoretischem Gebiet stetig wachsendes Interesse erfahren. Auf der experimentellen Seite eröffnet ein derart auf Resonanzniveaubreite von  $10^{-7}$  bis  $10^{-10}$  eV monochromatisierter Strahl weitreichende neue Möglichkeiten zum Studium von Fragestellungen aus den verschiedensten Bereichen der Physik (Kern- und Festkörperphysik,  $\gamma$ -Optik). Aber auch die Verwirklichung eines solchen Monochromators an sich ist eine Herausforderung und liefert neue Einsichten in die Resonanzstreuung kollektiver Systeme. Dies um so mehr, als für die verschiedenen Realisierungsmöglichkeiten inzwischen das theoretische Verständnis erarbeitet wurde.

Aus diesen theoretisch denkbaren Möglichkeiten die im Hinblick auf die technischen Gegebenheiten augenblicklich realisierbare und im Hinblick auf das Experiment optimale auszuwählen, ist Aufgabe dieser Arbeit. Dazu werden in Abschnitt II die Zielsetzungen und Anforderungen an die denkbaren Monochromatisierungsprinzipien vorgestellt. Auf Grund der dort dargestellten beschränkenden Bedingungen des Experimentierbetriebs am Speicherring DORIS des DESY in Hamburg werden nur zwei Verfahren im Detail diskutiert:

Die Kern-Braggstreuung an dünnen Einkristallen (Abschnitt IV) und die Totalreflexion an ebenen Medien bei streifendem Einfall (Abschnitt V und VI). Die theoretische Beschreibung der zugrunde liegenden physikalischen Sachverhalte geht von der kohärenten Streulänge des reflektierenden Systems aus. Diese Streulänge wird in Abschnitt III hergeleitet und für das hier exemplarisch betrachtete Mößbauerisotop  $^{57}\text{Fe}$  diskutiert.

Im Ausblick in Abschnitt VIII werden dann, basierend auf den gewonnenen Erkenntnissen über die Monochromatisierungseigenschaften der untersuchten Systeme und unter Einbeziehung eines speziellen in Abschnitt VII vorgestellten Detektors, die zu erwartenden Intensitätsverhältnisse in einem zukünftigen Experiment abgeschätzt.

## II. Problemstellung

### A) Grenzen konventioneller Mößbauerspektroskopie

Seit der Entdeckung des Mößbauereffekts im Jahre 1959 hat sich die Mößbauerspektroskopie zu einem außerordentlich fruchtbaren Zweig der physikalischen Forschung entwickelt. Die außergewöhnliche Energieauflösung dieses Verfahrens macht es zu einem hervorragenden Werkzeug zum Studium von Kern- und Festkörpereigenschaften sowie von chemischen Strukturen. Für diese Untersuchungen stehen in der Regel radioaktive Quellen ausreichender Intensität zur Verfügung.

Schon bald wurde aber auch das Interesse an Experimenten groß, die an die zu benutzenden Quellen Anforderungen stellen, die mit radioaktiven Präparaten gar nicht oder nur unter großen Schwierigkeiten zu erfüllen sind:

- i) Die Analyse der magnetischen Struktur komplizierter Verbindungen verlangt eine polarisierte  $\gamma$ -Quelle. Die polarisierte Strahlung erhält man aus aufgespaltenen, mittels eines äußeren Feldes ausgerichteten Quellen oder mittels zwischengeschalteter Absorber. Beide Verfahren reduzieren aber die verfügbare Intensität erheblich.
- ii) Zeitlich differentielle Messungen, die zusätzliche Information liefern, würden mit gepulsten Quellen einfacher. Bisherige Zeitmessungen, die Koinzidenzen mit vorangehenden Zerfallskanälen der Quelle ausnutzten, waren wegen der sehr kleinen Koinzidenzzählraten außerordentlich schwierig.
- iii) Auf dem Gebiet der nuklearen  $\gamma$ -Optik, in dem Erscheinungen wie Dichroismus, Doppelbrechung und Faraday-Rotation untersucht werden, sind Quellen mit geringer Divergenz unabdingbar. Das gleiche gilt für Interferenzexperimente und die Untersuchung von Kleinwinkelstreuung. Die natürlichen Quellen liefern in den interessierenden Raumwinkel nur sehr geringe Intensität, was zu Meßzeiten von mehreren Wochen führen kann.

Ruby [1] wies als erster darauf hin, daß in der Synchrotronstrahlung der großen Speicherringe (DORIS, SPEAR, VEPP) eine Quelle hoher Intensität für hochgradig kollimierte und polarisierte Photonen mit wohldefinierter

Zeitstruktur zur Verfügung steht. Seitdem arbeiten Gruppen in Amerika (S. Ruby, P. Flinn, R. Cohen), der UdSSR (G. Smirnov et al.) und Deutschland (R. Mößbauer, U. van Bürk, F. Hermes, München; E. Gerdau, H. Winkler, R. Ruffer, M. Mueller, Hamburg) daran, die Anwendbarkeit der Synchrotronstrahlung für Mößbaueruntersuchungen zu demonstrieren.

### B) Eigenschaften der Synchrotronstrahlung

Die in Speicherringen kreisenden geladenen Teilchen führen eine beschleunigte Bewegung aus und geben entsprechend den Gesetzen der Elektrodynamik Energie in Form von Bremsstrahlung ab. Diese Strahlung wird bei kreisförmigen Beschleunigern und Speicherringen Synchrotronstrahlung genannt. Sie ist wegen der relativistischen Geschwindigkeiten der beschleunigten Teilchen stark in deren Bewegungsrichtung gebündelt und füllt so, bei Umlauf des Teilchens, die Horizontalebene außerhalb des Ringes völlig aus. Die Eigenschaften des Strahlungsfeldes lassen sich bei bekannten Daten des Ringes wie Krümmungsradius, Teilchenenergie und -art und Strom auf der Grundlage einfacher Modellvorstellungen berechnen [2].

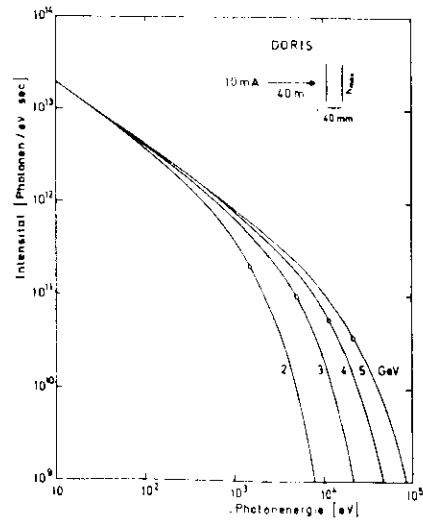


Abb. 1  
Spektralverteilung der Synchrotronstrahlung bei DORIS, I = 10 mA

Abbildung 1 zeigt den Intensitätsverlauf bei DORIS bei 10 mA Strahlstrom für verschiedene Teilchenenergien. Der horizontale Öffnungswinkel wurde zu 1 mrad angenommen, er ist im Experiment allein durch die Akzeptanz der Apparatur (Weite der Strahlrohre, Größe der Spiegel) bestimmt. Der vertikale Öffnungswinkel wurde groß im Verhältnis zur Divergenz der Strahlung (ca. 0,1 mrad) gewählt, so daß praktisch die gesamte Intensität erfaßt wird.

Die Strahlung ist exakt in der Ebene 100 % linear polarisiert, der E-Vektor schwingt parallel zu dieser Ebene. Oberhalb und unterhalb davon nimmt die Polarisation  $I_{||} / (I_{||} + I_{\perp})$  ab. Abbildung 2 zeigt diese Verhältnisse bei einer Photonenergie von 14,43 keV (= Resonanzenergie des  $^{57}\text{Fe}$ . Aus den in E) erläuterten Gründen werden seine charakteristischen Daten hier zur Abschätzung von Größenordnungen zugrunde gelegt.). Dargestellt sind für verschiedene Teilchenenergien die Intensität und Polarisation in einem Fenster der vertikalen Divergenz  $\Psi$ . Die horizontale Divergenz wurde zu 1 mrad, der Strom zu 10 mA gewählt. Für 0,1 mrad und 5 GeV ergibt sich so eine Intensität von  $6 \cdot 10^{10}$  Photonen/(eV s) in einem Raumwinkel von  $10^{-7}$  sr und eine Polarisation von 88 %. Für einen groben Vergleich mit radioaktiven Quellen interessiert die Zahl der Photonen pro Halbwertsbreite des betreffenden Mößbauerübergangs. Dabei ist für hochkonzentrierte Quellen zu beachten, daß sie wegen der Selbstabsorption bereits zerfallener

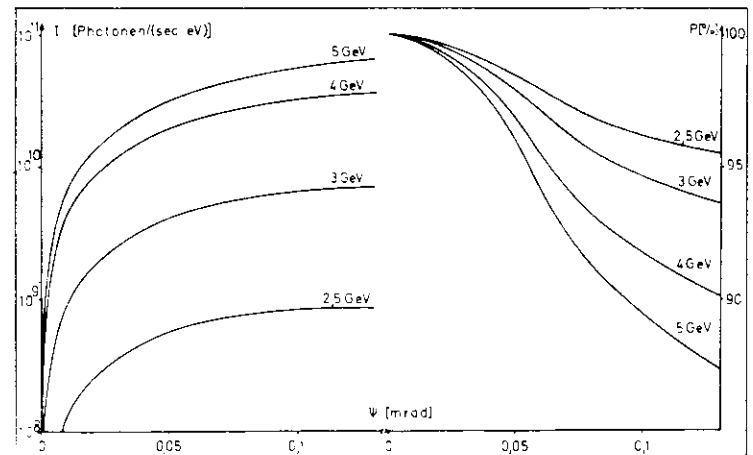


Abb. 2 Intensität und Polarisation gegen vertikale Divergenz bei symmetrischem Fenster

Kerne einem Alterungsprozeß unterliegen, der innerhalb der ersten Tage nach der Präparation die Intensität um eine Größenordnung erniedrigen kann. Tabelle 1 gibt eine Gegenüberstellung der zu erwartenden Intensitäten in  $5 \cdot 10^{-9}$  eV und  $10^{-7}$  sr.

Röntgenröhre	1/s
1 Curie $^{57}\text{Co}$	20/s
DORIS 5 GeV, 10 mA	300/s
ESRF geplant*	1500/s
ESRF + Undulator*	$3 \cdot 10^5$ /s

Tab. 1 Intensitäten verschiedener Strahlungsquellen, \* Zahlen aus [3]

Synchrotronstrahlung wäre also eine hervorragende Quelle für Mößbauerexperimente, wenn nicht der Untergrund an Photonen aus dem restlichen "quasi"-weißen Spektrum existierte, der an Photonenzahl die resonanzfähigen Quanten um viele Zehnerpotenzen übertrifft. Das Hauptproblem auf dem Weg zu erfolgreichen Experimenten ist also die Isolation des schmalen Mößbauerbandes aus dem weißen Untergrund.

### C) Monochromatisierung der Synchrotronstrahlung

Der einzige energieselektive Effekt mit der benötigten Energieschärfe ist der Mößbauereffekt selbst. Es liegt also nahe, ihn schon zur Monochromatisierung heranzuziehen. Um dabei den Hauptvorteil der Synchrotronstrahlung, die geringe Divergenz, zu erhalten, müssen kohärente Effekte wie Braggstreuung oder Totalreflexion eingesetzt werden. Um die Wärmebelastung und den nichtkohärenten Untergrund in späteren Monochromatisierungsstufen zu reduzieren, empfiehlt es sich, einen Vormonochromator zu benutzen. Das idealisierte Prinzip eines solchen Vorgehens zeigt Abbildung 3.

Zur Vormonochromatisierung bieten sich Braggreflexionen an idealen Einkristallen (wegen großer Perfektion und geringer Reflexbreite üblicherweise Ge und Si) an. Das transmittierte Energieband wird dann von zwei Faktoren bestimmt, nämlich von der Breite des Reflexes und von der Divergenz der einfallenden Strahlung. Beide lassen sich gemäß des folgenden

Zusammenhangs in Energiebreiten umrechnen:

$$\left| \frac{dE}{d\theta} \right| = \frac{E}{\tan\theta_B}$$

Die Energieunschärfe auf Grund der Reflexbreite (Ge (111) :  $10'' = 9$  eV) ist wegen der angebotenen weißen Strahlung nicht zu vermeiden, wenn man nicht auf aufwendige Anordnungen zurückgreifen will. Selbst dann ist eine bessere Monochromatisierung als auf 1 eV nicht zu erwarten, und man verzichtet auf einen Teil der Intensität mit der gewünschten Energie.

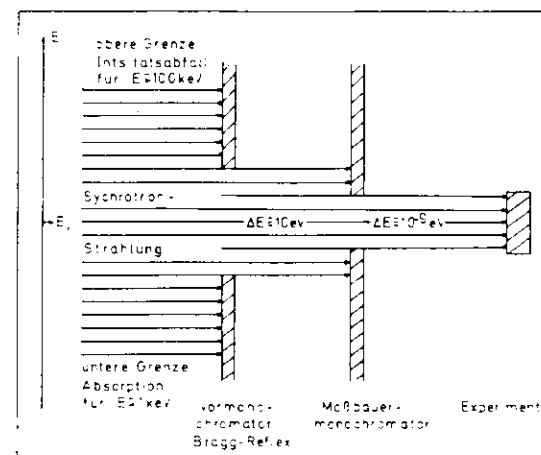


Abb. 3 Energieverhältnisse bei der Monochromatisierung, nicht maßstabsgerecht

Um das Energieband schmal zu halten, ist es also sinnvoll, die Divergenz des einfallenden Strahls mittels Blenden u. a. so zu beschränken, daß sie die Reflexbreite nicht wesentlich übersteigt.

Im folgenden Mößbauermonochromator ist dann durch kohärente Kernresonanzstreuung die gewünschte Mößbauerenergie zu isolieren. In der Regel ist der Streubeitrag der Atomelektronen, der nicht in gleichem Maße energieselektiv ist, nicht zu vernachlässigen. Dieser Mößbauermonochromator ist also so zu konzipieren, daß das Verhältnis von elektronischer zu resonanter Streuung, der Unterdrückungsfaktor, das ungünstige Verhältnis der Energiebreiten vor und nach dem Monochromator ( $10^{10}$ ) kompensiert. Dies erweist sich in der Praxis als außerordentlich schwierig, und die

Untersuchung der Realisierungsmöglichkeiten reiner kohärenter Kernresonanzstreuung (d. h. von experimentellen Anordnungen mit sehr großen Unterdrückungsfaktoren) bilden das Thema dieser Arbeit.

Die Anforderungen an den Monochromator können reduziert werden, wenn man den benutzten Detektor so auslegt, daß er eine zusätzliche Diskriminierung der nichtresonanten Strahlung gestattet, also einen eigenen Beitrag zum Unterdrückungsfaktor liefert. Eine solche Anordnung ist in Abbildung 4 skizziert.

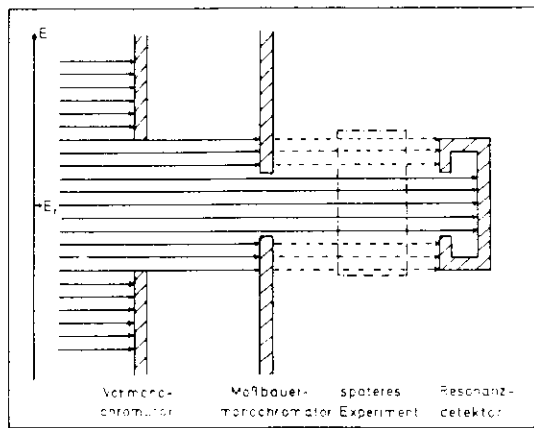


Abb. 4 Anordnung zur Monochromatisierung mit diskriminierendem Detektor

Zu einer solchen zusätzlichen Diskriminierung können zwei Eigenschaften der resonanten Strahlung herangezogen werden.

i) Sie kann in einem in den Detektor integrierten Absorber am gleichen Isotop das entsprechende Mößbauerniveau anregen. Wegen der geringen Übergangsenergie ist der nachfolgende Zerfall in der Regel stark konvertiert. Zum Nachweis bieten sich die inkohärent emittierten Konversionselektronen an. Der nichtresonante Anteil der Strahlung erzeugt Untergrundelektronen auf Grund des Photoeffekts. Der Wirkungsquerschnitt für diesen Prozeß ist allerdings kleiner (1/200).

ii) In den Speicherringen laufen die Elektronen in Bunchen um, die Strahlung ist also gepulst. Die Streuung an Elektronen erfolgt instantan, während

Kernstreuung als Resonanzprozeß mit typischen Zeitverzögerungen und der Größenordnung der Niveaulbensdauer erfolgt. Ist der zeitliche Bunchabstand größer als diese charakteristische Zeit (üblicherweise im Single-Bunch-Betrieb) und das Auflösungsvermögen des Detektors ausreichend, so kann durch Zeitdiskriminierung resonante von nichtresonanter Strahlung getrennt werden.

Beide Effekte wurden bereits erfolgreich ausgenutzt /4/. In VII wird das Prinzip eines diskriminierenden Detektors vorgestellt, wie er in dieser Gruppe entwickelt wird. Vorweggenommen sei hier das Ergebnis der Abschätzung seiner erwarteten Leistungsfähigkeit, die einen Unterdrückungsfaktor von  $10^{-4} - 10^{-5}$  beitragen sollte.

#### D) Wirkungsweise eines Mößbauermonochromators

Unter diesen Voraussetzungen muß der eigentliche Mößbauermonochromator eine Unterdrückung von  $10^{-6} - 10^{-7}$  liefern. Um dies zu erreichen, müssen die unterschiedlichen Charakteristika von Kern- und Elektronenstreuung ausgenutzt werden:

i) Weicht die Strahlungscharakteristik des benutzten Mößbauerübergangs von der E1-Charakteristik der Elektronen ab, so ist es unter Umständen möglich, die Streugeometrie so zu wählen, daß Kerne und Elektronen, jeweils ausschließlich, verschiedene Polarisierungen streuen und die Hauptpolarisation der Synchrotronstrahlung nur von den Kernen übertragen wird. Allerdings wird dann die immer noch zu einigen Prozent vorhandene zweite Polarisation von den Elektronen bevorzugt gestreut, so daß die möglichen Unterdrückungsfaktoren auf  $10^{-2}$  beschränkt sind.

ii) Spezielle Streueigenschaften der Kerne in einem Einkristall können die Symmetrie des Kerngitters gegenüber dem Elektronengitter verringern. Es ist dann möglich, Kernreflexe zu finden, für die der entsprechende elektronische Reflex verboten ist. Die erreichbaren Unterdrückungsfaktoren hängen dann wesentlich von der Perfektion des Kristalls ab. Ein einfaches Beispiel für einen solchen Effekt wäre eine regelmäßige Anordnung von zwei Isotopen eines Elements, von denen nur eines resonanzfähig ist. Bei entsprechendem Streuwinkel interferieren dann die elektronischen Streubeiträge destruktiv, während sich die nur an jedem zweiten Atom



stattfindende Resonanzstreuung konstruktiv überlagert. Allerdings scheint es unmöglich, solche Strukturen in ausreichender Qualität herzustellen. Ein anderer symmetriebrechender Faktor können Hyperfeinfelder sein, auf die nur die Kerne empfindlich sind [57], [67]. Schließlich werden reine Kernreflexe an komplexen Einkristallen möglich, bei denen der Formfaktor der Elektronen in der Elementarzelle für gewisse Richtungen verschwindet.

iii) In vielen Fällen, vor allem bei großen Streuwinkeln, ist die Streustärke der Kerne größer als die der Elektronen. Es ist also ein Braggreflex an einem den Mößbauerkern enthaltenden Kristall denkbar, der so dünn ist, daß er bezüglich der elektronischen Reflektivität transparent erscheint, während für Kernstreuung der Kristall noch relativ dick bleibt, so daß hier die Reflektivität ausreichend ist. Die Grenze der Unterdrückungsfaktoren ist dann durch das Verhältnis der Streustärken gegeben ( $10^{-2}$  –  $10^{-4}$ ). Diese Werte sind allerdings nur zu erreichen bei resonanten Reflektivitäten um 25 %.

iv) Eine unterschiedliche Streustärke der Kerne und Elektronen läßt sich auch bei Totalreflexionen unter streifendem Einfall ausnutzen. Da der Brechungsindex von Festkörpern für  $\gamma$ -Strahlung in der Größenordnung  $10^{-6}$  kleiner als 1 ist, tritt bei sehr kleinem Einfallswinkel Totalreflexion auf. Der Grenzwinkel der Totalreflexion ist dabei proportional zur Streustärkendichte des Mediums, und der Einfallswinkel kann oberhalb des Grenzwinkels der elektronischen Streuung gewählt werden, so daß sie im Verhältnis zur Kernstreuung, deren Grenzwinkel in diesem Fall also größer sein muß, unterdrückt wird. Dieser Effekt kann durch Vergütung der Oberfläche mit einer Schicht adäquater Dicke und Reflektivität verstärkt werden. Die zu erwartenden Faktoren sollten, je nach Qualität der Vergütung, zwischen  $10^{-2}$  und  $10^{-4}$  liegen, und zwar bei resonanten Reflektivitäten um 50 %.

Um die geforderten Unterdrückungsfaktoren zu erreichen, müssen also gewisse Kombinationen dieser Verfahren in einem mehrstufigen Monochromator so vereint werden, daß die transmittierte resonante Intensität nicht zu stark reduziert wird. Die Auswahl der verwendeten Prinzipien wird dabei wesentlich vom speziellen Kernübergang und von den allgemeinen technischen Möglichkeiten abhängen.

## E) Auswahl eines Mößbauerisotops und des Monochromatisierungsprinzips im Hinblick auf Experimente bei DORIS

Die Wahl des zu benutzenden Mößbauerisotops wird wesentlich bestimmt nicht nur durch die Randbedingungen, die aus der physikalischen Fragestellung resultieren, sondern auch aus den Eigenheiten des technologischen Umfeldes. So begrenzt die Intensitätscharakteristik von DORIS die möglichen Isotope auf solche, deren Übergangsenergie kleiner als 25 keV ist. Tabelle 2 gibt eine Zusammenstellung der gängigen Mößbauerkerne in diesem Energiebereich.

	L [keV]	R	$\Delta E [10^{-8} \text{ eV}]$	$N [s^{-1}]$	IH [%]	Multipolordnung
$^{57}\text{Fe}$	14,4	410	0,47	300	2,14	M 1
$^{73}\text{Ge}$	13,2	0,004	0,015	11	7,76	E 2
$^{119}\text{Sn}$	23,9	90	2,57	770	8,85	M 1
$^{149}\text{Sm}$	22,5	0,14	6,41	2180	13,83	M 1 + 0,5 % E 2
$^{151}\text{Eu}$	21,5	1,35	4,7	1740	47,82	M 1 + 0,1 % E 2
$^{169}\text{Tm}$	8,4	0,2	11,4	14250	100	M 1 + 0,1 % E 2
$^{181}\text{Ta}$	6,2	4,2	0,0067	12	99,9	E 1

Tab. 2 Mößbauerisotope mit  $E_{\text{res}} \leq 25 \text{ keV}$ ; Einzelheiten im Text

Neben der Resonanzenergie sind aufgeführt R, das das Verhältnis der Kern- zu Elektronenstreuung gibt. Dabei ist der Einfachheit halber angenommen, daß der Debye-Waller-Faktor 1 ist und das Isotop in 100 % Anreicherung vorliegt. Es folgt die Linienbreite des Niveaus, die mit der Übergangsenergie die Zahl der resonanzfähigen Photonen im Synchrotronstrahl N bestimmt. Es wurde dabei eine Teilchenenergie von 5 GeV und ein Strom von 10 mA zugrunde gelegt. Isotope mit geringer Isotopenhäufigkeit IH müssen in technisch aufwendigen Verfahren angereichert werden, was ihre Verfügbarkeit in Hinsicht auf Menge und Preis einschränkt. Die Art des Übergangs definiert die Einsetzbarkeit zur polarisationsabhängigen Unterdrückung (IEi).

Das hervorragende Verhältnis der Streustärken bei akzeptabler Zahl von resonanzfähigen Photonen prädestiniert das  $^{57}\text{Fe}$  für erste Experimente. Aus diesem Grund gilt ihm in dieser Arbeit das Augenmerk. Als gängiges Mößbauerisotop wird es industriell angereichert und ist als  $\sim 100\%$  Isotop

erhältlich, allerdings zu Preisen, die nur beschränkte Mengen zugänglich machen. Der Strahlquerschnitt bei DORIS hat eine Ausdehnung von einigen Quadratcentimetern. Perfekte Fe-Einkristalle dieser Größe wurden bisher nicht hergestellt, außerdem übersteigt der nötige Materialeinsatz an <sup>57</sup>Fe die Möglichkeiten. Dies gilt auch für die Produktion ausreichend großer Hämatit- und Boratkristalle. Dem Experiment zugänglich bleiben damit die beiden Monochromatisierungsverfahren (I D iii, iv), die nur dünne <sup>57</sup>Fe Schichten, die im Vakuum aufgedampft werden, benötigen. Die theoretischen Möglichkeiten und die experimentellen Befunde nur dieser beiden Verfahren werden deshalb hier diskutiert.

Für zukünftige Anwendungen ist auch das <sup>119</sup>Sn wegen seiner großen Zahl resonanter Photonen, zumindest bei 5 GeV, interessant. Allerdings ist die Realisierung von Experimenten wegen des geringeren R schwieriger als beim <sup>57</sup>Fe.

### III. Theorie der Mößbauerstreuung

Im Rahmen dieser Arbeit, die sich mit Kohärenzstreuung an Mößbaueratomen befaßt, muß eine Beschreibung des Streuvorganges gewählt werden, die Phasen- und Polarisationsabhängigkeiten erfaßt. Im Gegensatz zum üblichen Mößbauerexperiment reicht also die Information, die im Absorptionswirkungsquerschnitt enthalten ist, nicht aus. Der Streuer ist vielmehr zu charakterisieren durch seine Streulänge  $f$ , die angibt, mit welcher Amplitude aus einem einfallenden Feld mit Wellenvektor  $\vec{k}_0$  und Polarisation  $\vec{\epsilon}_0$  ein gestreutes Feld mit  $\vec{k}_f$  und  $\vec{\epsilon}_f$  erzeugt wird.

$$E_f \vec{\epsilon}_f = f(\vec{k}_f, \vec{\epsilon}_f, \vec{k}_0, \vec{\epsilon}_0) E_0 \vec{\epsilon}_0$$

$f$  hängt im allgemeinen vom Zustand des Streuers ab. Kohärente Streuung, die allein konstruktive Interferenz ermöglicht, ist nur dann gegeben, wenn der Streuvorgang nicht lokalisierbar ist und demzufolge der einzelne Streuer nicht durch eine Zustandsänderung ausgezeichnet ist. Es werden also im folgenden nur Streuprozesse betrachtet, bei denen Anfangs- und Endzustand des Streuers gleich sind. Es sollen nun, für diese elastische Streuung, die Hauptzüge einer kovarianten Ableitung der Streulänge gegeben werden.

#### A) Allgemeine Beschreibung elastischer Photonstreuung

(Hier bezeichnen Größen der Form  $\vec{a}$  räumliche Vektoren,  $a$  bezeichnet einen 4-Vektor  $a_\nu$ , z. B.  $x = (x, y, z, ict) = (\vec{x}, ict)$ , oder einen Skalar. Skalarprodukte sind gegeben in der Form  $kx = \vec{k}\vec{x} - \omega t$  oder  $a_\mu b_\mu = \vec{a}\vec{b} - a_4 b_4$ .)

In Lorentz-invarianter Darstellung wird ein Photon charakterisiert durch sein Potential  $A_\nu$ , das, legt man die Lorentzbedingung  $\nabla_\mu A_\mu^0 = 0$  zugrunde, im ladungsfreien Raum der Wellengleichung genügt:

$$\square A_\nu^0 = 0$$

Da ein Photon in der Regel durch eine (beliebige) Quellstromdichte  $j_\nu^Q$  erzeugt wird, ist sein Potential eine Lösung der Gleichung:

$$\square A_V^H = -\frac{4\pi}{c} \langle f^0 | j_V^0(x) | i^0 \rangle$$

Formal werden solche inhomogenen Differentialgleichungen mittels der zugehörigen Greenschen Funktion gelöst. Hierbei folgt für  $g_{\nu\mu}(x-y)$ :

$$A_V^H(x) = A_V^0(x) - \frac{4\pi}{c} \int g_{\nu\mu}(x-x') \langle f^0 | j_\mu^0(x') | i^0 \rangle d^4x' \quad (1)$$

$$\square_x g_{\nu\mu}(x-x') = \delta(x-x') \delta_{\nu\mu}$$

Eindeutig festgelegt werden die Lösungen erst durch die Spezifikation der Randbedingungen. Für Streuprobleme ist es üblich, zu fordern, daß in der fernen Vergangenheit das Potential gegen null zu gehen habe, und man schreibt:

$$A_V^H(x) = \frac{1}{c} \int G_{\nu\mu}(x-y) \langle f^0 | j_\mu^0(y) | i^0 \rangle d^4y \equiv A_V(x)$$

$G_{\nu\mu}$  ist der Photon-Propagator, der den Austausch eines Photons zwischen dem Punkt  $y$ , an dem es erzeugt wurde, und dem Punkt  $x$ , an dem es (mittels einer weiteren Wechselwirkung mit einem Detektorstrom  $j_\nu^D$ ) nachgewiesen wird, beschreibt. Bewegt sich das Photon nach seiner Erzeugung frei, so ist der Photon-Propagator, der im Grenzfall zu den klassischen retardierten Potentialen führt, gegeben durch:

$$d_{\mu\nu}(x-y) \equiv \frac{1}{\hbar c} \langle 0 | T \hat{A}_\mu(x) \hat{A}_\nu(y) | 0 \rangle$$

Hier ist  $|0\rangle$  das Photonvakuum, und  $T$  beschreibt die Zeitordnung. Kann das Photon mit streufähigen Systemen in Wechselwirkung treten, so hängt der Propagator vom Zustand  $\Psi$  des Streuers ab [7]:

$$D_{\mu\nu}(x-y) \equiv \frac{1}{\hbar c} \langle \Psi, 0 | T \hat{A}_\mu^H(x) \hat{A}_\nu^H(y) | 0, \Psi \rangle_H \quad (2)$$

Der Index  $H$  bezeichnet Zustände und Operatoren im Heisenbergbild. Dieser Ausdruck läßt sich nicht exakt lösen. Da der Hamiltonoperator des Gesamtsystems sich aber in einen potential- bzw. stromabhängigen Teil und einen meist kleinen Wechselwirkungsterm  $V$  zerlegen läßt, bietet es sich an, zum Wechselwirkungsbild überzugehen. Dazu idealisiert man den Streuprozess in der Art, daß man sich die Wechselwirkung zur Zeit  $t = -\infty$  "abgeschaltet" denkt, um sie dann langsam "anzuschalten". Dann

gilt offensichtlich:

$$\Psi(\vec{x}, t = -\infty) = \Psi^H(\vec{x})$$

Die zeitliche Entwicklung der Zustände ist gegeben durch die  $\hat{S}$ -Matrix

$$\hat{S}(t_1, t_2) = T \exp -\frac{i}{\hbar} \int_{t_2}^{t_1} \hat{V}(t) dt$$

mit der Eigenschaft:

$$\Psi(\vec{x}, t) = \hat{S}(t, t') \Psi(\vec{x}, t')$$

Damit wird aus (2)

$$D_{\mu\nu}(x-y) = \frac{1}{\hbar c} \langle \Psi, 0 | T \hat{S}(-\infty, t_x) \hat{A}_\mu(x) \hat{S}(t_x, -\infty) x \times \hat{S}(-\infty, t_y) \hat{A}_\nu(y) \hat{S}(t_y, -\infty) | 0, \Psi \rangle$$

und  $|0\rangle$  ist nun das Photonvakuum zur Zeit  $t = -\infty$ , d. h. das Vakuum freier Photonen.

Mit der Abkürzung  $\hat{S} = \hat{S}(-\infty, +\infty)$  folgt dann [8]:

$$D_{\mu\nu}(x-y) = \frac{1}{\hbar c} \langle \Psi, 0 | T \hat{A}_\mu(x) \hat{A}_\nu(y) \hat{S} | 0, \Psi \rangle \langle \Psi, 0 | \hat{S} | 0, \Psi \rangle$$

Und  $\hat{S}$  lautet explizit:

$$\hat{S} = T \exp \frac{i}{\hbar c^2} \int j_\epsilon(y) \hat{A}_\epsilon(y) d^4y$$

Entwickelt man die e-Funktion, so ergibt sich für  $D_{\mu\nu}$ :

$$D_{\mu\nu}(x-y) = \frac{1}{\hbar c} \langle \Psi, 0 | \hat{S} | 0, \Psi \rangle^{-1} x \times \left\{ \langle \Psi, 0 | T \hat{A}_\mu(x) \hat{A}_\nu(y) | 0, \Psi \rangle + \frac{i}{\hbar c^2} \int \langle \Psi, 0 | T \hat{A}_\mu(x) \hat{A}_\nu(y) j_\epsilon^1(u) \hat{A}_\epsilon(u) | 0, \Psi \rangle d^4u + \frac{1}{2} \left( \frac{i}{\hbar c^2} \right)^2 \int \int \langle \Psi, 0 | T \hat{A}_\mu(x) \hat{A}_\nu(y) j_\epsilon^1(u) \hat{A}_\epsilon(u) j_\eta^1(v) \hat{A}_\eta(v) | 0, \Psi \rangle d^4u d^4v + \dots \right\}$$

Die weitere Auswertung dieses Ausdrucks vereinfacht sich, da

- i) der Term, der die Ausbreitung freier Photonen beschreibt, exakt berechenbar ist,
- ii) Erwartungswerte mit einer ungeraden Zahl von Feldoperatoren verschwinden, da es sich um Matrixelemente einer ungeraden Kombination von Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren zwischen Vakuumzuständen

handelt,

iii) man zur Berechnung von Matrixelementen von vier und mehr Feldoperatoren auf das Wick'sche Theorem /9/ zurückgreifen kann.

Die so gewonnenen Terme lassen sich umgruppieren, so daß der Erwartungswert von  $S^{-1}$  sich heraushebt, und man erhält für  $D_{\mu\nu}$  eine Potenzreihenentwicklung in  $i/\hbar c^3$ . Sie lautet in einer verkürzten Schreibweise, in der gleiche Indices auch gleiche Koordinaten repräsentieren und in der über doppelte Indices integriert und summiert wird:

$$D_{\mu\nu} = d_{\mu\nu} + \frac{i}{\hbar c^3} \langle \psi | T d_{\mu\epsilon} \hat{j}_{\epsilon} \hat{j}_{\eta} d_{\nu\eta} | \psi \rangle + \left( \frac{i}{\hbar c^3} \right)^2 \langle \psi | T d_{\mu\epsilon} \hat{j}_{\epsilon} \hat{j}_{\kappa} d_{\kappa\lambda} \hat{j}_{\lambda} \hat{j}_{\eta} d_{\nu\eta} | \psi \rangle + \dots$$

Mit dem Operator  $\hat{g}$ , der definiert ist durch

$$\hat{g} \equiv 1 + \frac{i}{\hbar c^3} \hat{j}_{\epsilon} d_{\epsilon\eta} \hat{j}_{\eta} \hat{g} \quad (3)$$

läßt sich dies offensichtlich schreiben als

$$D_{\mu\nu} = d_{\mu\nu} + \frac{i}{\hbar c^3} \langle \psi | d_{\mu\epsilon} T \hat{j}_{\epsilon} \hat{g} \hat{j}_{\eta} d_{\nu\eta} | \psi \rangle \quad (4)$$

Der Propagator freier Photonen berechnet sich im Formalismus der Feldquantisierung zu /10/:

$$d_{\mu\nu} = \delta_{\mu\nu} \delta_+(x-y) = \delta_{\mu\nu} \int \frac{1}{-k^2 + i\epsilon} e^{ik(x-y)} \frac{d^4k}{(2\pi)^4} \quad (5)$$

und man verifiziert leicht, daß er, bis auf einen konstanten Faktor, tatsächlich eine Greensche Funktion der Form (1) ist. Außerdem sieht man, daß gilt:

$$d_{\mu\nu} = d_{\nu\mu}$$

Das gestreute Potential läßt sich nun mit (4) und (1) berechnen. Dabei ist der erste Term

$$A_{\mu}^0(z) = \frac{1}{c} \int \delta_+(z-x) \langle t^0 | j_{\mu}^0(x) | t^0 \rangle d^4x$$

das Potential, das das einfallende Photon charakterisiert und das durch das spezielle Experiment definiert wird. Dies ist meist so konzipiert, daß man mit einfallenden ebenen Wellen arbeitet.

Das Potential nach der Streuung ist also gegeben durch

$$A_{\mu}(z) = A_{\mu}^0(z) + \frac{i}{\hbar c^3} \iint \delta_+(z-u) \langle \psi | T j_{\mu}^0(u) \hat{g} j_{\nu}^0(v) | \psi \rangle A_{\nu}^0(v) d^4u d^4v = A_{\mu}^0(z) + A_{\mu}^s(z) \quad (6)$$

und zerfällt in einen ungestört durchlaufenden Teil und das eigentliche gestreute Potential, das allein vom Streuer beeinflusst wird. Dessen Zeitabhängigkeit kann separiert werden:

$$\langle \psi | T j_{\mu}^0(x) \hat{g} j_{\nu}^0(x') | \psi \rangle = \langle \psi | T e^{i\hat{H}_S t/\hbar} j_{\mu}^0(\vec{x}) e^{-i\hat{H}_S t/\hbar} \hat{g} e^{i\hat{H}_S t'/\hbar} j_{\nu}^0(\vec{x}') e^{-i\hat{H}_S t'/\hbar} | \psi \rangle$$

Der Operator  $G$

$$\hat{G}(t-t') \equiv e^{-i\hat{H}_S t/\hbar} \hat{g} e^{i\hat{H}_S t'/\hbar} = \hat{G}_0(t-t') + \frac{i}{\hbar c^3} \iint \hat{G}_0(t-t_1) j_{\epsilon}^0(\vec{x}_1) \delta_+(x_1-x_2) \hat{G}_0(t_1-t_2) j_{\epsilon}^0(\vec{x}_2) \hat{G}_0(t_2-t') d^4x_1 d^4x_2 \quad (7)$$

$$\hat{G}_0(t-t') \equiv e^{-i\hat{H}_S(t-t')/\hbar}$$

liefert dann die Beschreibung der zeitlichen Entwicklung des Streuers zwischen Absorptions- und Emissionsvorgang.

### B) Streuung an einem gebundenen Mößbauerkern

Betrachtet man Resonanzstreuung an einem Mößbauerkern ( $\hbar\omega_0 = E_a - E_0$ ), so hat der angeregte Zustand  $|\Psi_a\rangle$  eine relativ lange Lebensdauer ( $10^{-6} - 10^{-9}$  s) und wegen der damit verbundenen Energieschärfe sind nur Prozesse wahrscheinlich, für die der Emissionsvorgang auf den Absorptionsvorgang folgt. Diesem Sachverhalt kann man Rechnung tragen, indem man  $\hat{G}_0$  in (7), der offensichtlich die Entwicklung eines störungsfreien Zustandes beschreibt, nur in die Zukunft wirken läßt; d. h., man setzt

$$\hat{G}_0(t-t') = \theta(t-t') e^{-i\hat{H}_S(t-t')/\hbar}, \quad \theta(t) = \begin{cases} 1 & t \geq 0 \\ 0 & t < 0 \end{cases}$$

und kann dann in (6) auf den Zeitordnungsoperator verzichten.

Üblicherweise sind die streuenden Kerne nicht absolut im Raum fixiert, sondern in eine Matrix eingebunden, so daß der Kernschwerpunkt Phonon schwingungen ausführen kann. Der Streuer ist dann charakterisiert durch Produktzustände aus Matrix- und Kernzuständen, die folgender Schrödingergleichung genügen:

$$\hat{H}_S |\psi\rangle = (\hat{H}_M + \hat{H}_K) |\varphi_n, \chi_m\rangle = (E_n + E_m) |\varphi_n, \chi_m\rangle$$

Die Möglichkeit der Schwerpunktsbewegung berücksichtigt man, indem man ersetzt:

$$\vec{r} \rightarrow \vec{r} - \hat{R}$$

wobei  $\hat{R}$  der Schwerpunktsoperator ist.

Das gestreute Potential wird dann (der Streuer befinde sich im Grundzustand) unter Annahme einer einfallenden ebenen Welle mit der Amplitude  $a_V^0$ :

$$A_{\mu}^s(z) = \frac{i}{\hbar c^3} \iint e^{i(E_0 + \epsilon_0)(t-t')/\hbar} \times \langle \chi_0 \varphi_0 | \delta_{\epsilon}(z-x) \hat{J}_{\mu}(\vec{r}-\hat{R}) \hat{G}(t-t') \hat{J}_{\nu}(\vec{r}-\hat{R}) | \varphi_0 \chi_0 \rangle a_V^0 e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}'} d^4x d^4x'$$

Mit der expliziten Form des Photonpropagators (5) lassen sich Raum- und Zeitvariable trennen, und mit der Umformung

$$\int e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}} \delta_{\epsilon}(\vec{r}-\hat{R}) d^3x = e^{i\vec{k} \cdot \hat{R}} \delta_{\epsilon}(\vec{k})$$

lassen sich bei Übergang zu den Fouriertransformierten die Zeit- und Frequenzintegrale ausführen:

$$A_{\mu}^s(z) = -\frac{2i}{4\pi^2 \hbar c^2} \int \frac{1 - \vec{k}^2 \omega_0^2 / c^2 + i\epsilon}{\omega_0^2 + i\epsilon} e^{i\vec{k} \cdot \vec{z} - i\omega_0 t} \times \langle \chi_0 \varphi_0 | e^{-i\vec{k} \cdot \hat{R}} \delta_{\epsilon}(\vec{k}) \hat{G}(\frac{E_0 + \epsilon_0}{\hbar} + \omega_0) \hat{J}_{\nu}(\vec{k}) e^{i\vec{k} \cdot \hat{R}} | \varphi_0 \chi_0 \rangle a_V^0 d^3k$$

Zur Bestimmung von  $\hat{G}(\omega)$  führt man in (7) die Abkürzung

$$\hat{\Delta}(\vec{x}_1, \vec{x}_2, t_1 - t_2) \equiv \hat{J}_{\epsilon}(\vec{x}_1 - \hat{R}) \delta_{\epsilon}(x_1 - x_2) \hat{G}_0(t_1 - t_2) \hat{J}_{\epsilon}(\vec{x}_2 - \hat{R})$$

ein, d. h.:

$$\hat{G}(t-t') = \hat{G}_0(t-t') + \frac{i}{\hbar c^3} \iint \hat{G}_0(t-t') \hat{\Delta}(\vec{x}_1, \vec{x}_2, t_1 - t_2) \hat{G}(t_2 - t') d^4x_1 d^4x_2$$

Fouriertransformationen führt diese Integralgleichung in eine algebraische über:

$$\hat{G}(\omega) = \hat{G}_0(\omega) + \frac{i}{\hbar c^3} \hat{G}_0(\omega) \iint \hat{\Delta}(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \omega) d^3x_1 d^3x_2 \hat{G}(\omega) \tag{8}$$

$$\Rightarrow \hat{G}(\omega) = (1 - \frac{i}{\hbar c^3} \hat{G}_0(\omega) \hat{\Delta}(\omega))^{-1} \hat{G}_0(\omega)$$

mit  $\hat{G}_0(\omega) = i(\omega - \hat{H}_S/\hbar - i\epsilon)^{-1}$

$\hat{G}_0(\omega)$  ist also ein Diagonaloperator; daß dies in guter Näherung auch für  $\hat{\Delta}(\omega)$  gilt, sieht man folgendermaßen:

Betrachtet man die Darstellung, in der  $\hat{R}$  zeitabhängig ist, so folgt:

$$\langle \chi_1 \varphi_1 | \hat{\Delta}(t_1 - t_2) | \varphi_0 \chi_0 \rangle = -4\pi \theta(t_1 - t_2) e^{i(E_0 t_2 - \epsilon_1 t_1)/\hbar} \int \frac{1}{-\vec{k}^2 + i\epsilon} e^{-i\vec{k} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \times \langle \chi_1 | e^{-i\vec{k} \cdot (\hat{R}(t_1) - \hat{R}(t_2))} | \chi_0 \rangle \langle \varphi_1 | \hat{J}_{\epsilon}(\vec{k}) e^{i\vec{k} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \hat{J}_{\epsilon}(-\vec{k}) | \varphi_0 \rangle \frac{d^3k}{(2\pi)^3}$$

Da  $\hat{\Delta}(t_1 - t_2)$  die Entwicklung des Systems unter Emission und Absorption eines virtuellen Photons beschreibt, ist die charakteristische Zeitdifferenz  $t_1 - t_2$  gegeben durch die Zeit, die ein Photon zum Durchqueren des Kerns benötigt. Diese Zeit ist extrem kurz verglichen mit der Frequenz der Gitterschwingungen, und man kann deswegen  $\hat{R}(t_1) = \hat{R}(t_2)$  setzen:

$$\langle \chi_1 | e^{-i\vec{k} \cdot (\hat{R}(t_1) - \hat{R}(t_2))} | \chi_0 \rangle = \delta_{\chi_1 \chi_0}$$

Mit analogen Argumenten läßt sich zeigen, daß  $\hat{\Delta}$  auch in den Kernzuständen diagonal ist. Die Diagonalelemente sind gegeben durch:

$$\langle \chi_0 \varphi_0 | \hat{\Delta}(t_1 - t_2) | \varphi_0 \chi_0 \rangle = -4\pi \theta(t_1 - t_2) \sum_{\vec{k}} e^{i(E_{\vec{k}} + \epsilon_0)(t_1 - t_2)} \times \int \frac{1}{-\vec{k}^2 + i\epsilon} \hat{J}_{\epsilon}^{\alpha}(\vec{k}) \hat{J}_{\epsilon}^{\beta}(-\vec{k}) e^{-i\vec{k} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \frac{d^3k}{(2\pi)^3}$$

Die Integration über  $k_{\mu}$  läßt sich ausführen und liefert bei anschließendem Übergang zur Fouriertransformierten:

$$\langle \chi_0 \varphi_0 | \hat{\Delta}(\omega) | \varphi_0 \chi_0 \rangle = 2\pi \sum_{\vec{k}} \frac{|\vec{k}|^{-1}}{\omega - (c|\vec{k}| + (E_{\vec{k}} + \epsilon_0)/\hbar) + i\epsilon} \hat{J}_{\epsilon}^{\alpha}(\vec{k}) \hat{J}_{\epsilon}^{\beta}(-\vec{k}) \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \tag{9}$$

Da also  $\hat{G}_0(\omega)$  und  $\hat{\Delta}(\omega)$  kommutieren, läßt sich (8) umformen zu:

$$\hat{G}(\omega) = i(\omega - (\hat{H}_S - \hat{\Delta}(\omega)/cV\hbar)^{-1}$$

Der Realteil von  $\hat{\Delta}(\omega)$  liefert offenbar nur eine Energieänderung der Zustände, die von jetzt ab in  $\hat{H}_S$  inkorporiert sei. In

$$\hat{G}(\omega) = i(\omega - (\hat{H}_S - i\text{Im}\hat{\Delta}(\omega)/\hbar)/\hbar)^{-1} \quad (10)$$

spielt der Imaginärteil dann die Rolle einer Linienbreite. Aus (9) erhält man nämlich:

$$\begin{aligned} \langle \chi_{\phi_n} | \frac{1}{\hbar c} \text{Im} \hat{\Delta}(\omega) | \phi_n \chi_0 \rangle &= \\ \frac{2\pi}{\hbar c} \sum_b \int \int \frac{e^{-i(\omega - (c|\vec{k}| + (E_b + e_0)/\hbar))t + e_2}}{(\omega - (c|\vec{k}| + (E_b + e_0)/\hbar))^{2+e_2}} j_E^{in}(|\vec{k}|, \Omega) j_E^{an}(|\vec{k}|, -\Omega) |\vec{k}| \frac{d\vec{k} d\Omega}{(2\pi)^3} & \\ = \frac{1}{4\pi\hbar c} \sum_b \int (\omega - \frac{E_b + e_0}{\hbar}) j_E^{in}(\frac{\omega}{c} - \frac{E_b + e_0}{\hbar c}, \Omega) j_E^{an}(\frac{\omega}{c} - \frac{E_b + e_0}{\hbar c}, -\Omega) d\Omega & \end{aligned}$$

Andererseits ergibt sich, z. B. aus Fermis Goldener Regel, daß die Gamma-Halbwertsbreite folgende Form hat:

$$\begin{aligned} \Gamma_Y^n &= \frac{1}{2\pi c^3} \int \omega^n j_E^{in}(\frac{\omega^n}{c}, \Omega) j_E^{an}(\frac{\omega^n}{c}, -\Omega) d\Omega \quad \hbar\omega^n = E_r - E_i \\ \Rightarrow \frac{1}{2\hbar} \Gamma_Y^n &= \langle \chi_{\phi_n} | \frac{1}{\hbar c} \text{Im} \hat{\Delta}(\frac{E_n + e_0}{\hbar}) | \phi_n \chi_0 \rangle \quad (11) \end{aligned}$$

Für den natürlich ebenfalls diagonalen Operator  $\hat{G}$  schreibt man deswegen statt (10):

$$\hat{G}(\omega) = i(\omega - \frac{\hat{H}_S + \hat{\Delta}(\omega)}{\hbar})^{-1}$$

Damit ergibt sich das gestreute Potential zu:

$$\begin{aligned} A_{\mu}^S(z) &= \frac{1}{2\pi\hbar c^2} \int e^{i(\vec{k}z - \omega t)} \frac{1}{-k^2 - \omega_0^2/c^2 + i\epsilon} \\ &\times \sum_{x_b, \phi_b} \langle \chi | e^{-i\vec{k}\vec{R}} | \chi_b \rangle \langle \chi_b | e^{i\vec{k}_0\vec{R}} | \chi_0 \rangle \\ &\times \frac{j_{\mu}^{in}(-\vec{k}) j_{\nu}^{an}(\vec{k}_0) a_{\nu}}{\omega_b + (E_b - E_0 - e_0)/\hbar + i\langle \chi_b \phi_b | \hat{G}(\omega_b + (E_b + e_0)/\hbar) | \phi_b \chi_b \rangle / 2\hbar} d^3k \end{aligned}$$

In der Nähe einer Kernresonanz gilt  $\hbar\omega_0 = E_b - E_0$ , der Erwartungswert von  $\hat{G}_Y$  ist deshalb in guter Näherung durch die Gamma-Halbwertsbreite gegeben. Sie ist in der Regel sehr viel kleiner als die Kristallenergieendifferenzen  $e_b - e_0$ , deswegen trägt in der Summe über  $\chi_b$  nur der Term mit  $\chi_0$  zu  $A_{\mu}^S$  bei. Zur Ausführung des verbleibenden Integrals schreibt man

um:

$$\begin{aligned} A_{\mu}^S(z) &= \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{e^{i(\vec{k}z - \omega t)}}{k^2 - \omega_0^2/c^2 - i\epsilon} d^3k \\ &\times \frac{1}{c^2} \sum_{\phi_b} \frac{j_{\mu}^{in}(-\vec{k}) j_{\nu}^{an}(\vec{k}_0) a_{\nu}}{E_b - E_0 - \hbar\omega_b - \frac{i}{2}\Gamma_Y} \langle \chi_0 | e^{-i\vec{k}\vec{R}} | \chi_0 \rangle \langle \chi_0 | e^{i\vec{k}_0\vec{R}} | \chi_0 \rangle a_{\nu}^0 \\ &\equiv \frac{1}{|z|} e^{i(\vec{k}_Y z - \omega_0 t)} F_{\mu\nu}^0(-i\vec{v}, \vec{k}_0) a_{\nu}^0 \quad , \vec{k}_Y = \frac{z}{|z|} k_0 \end{aligned} \quad (12)$$

und erhält so einen Ausdruck, in dem das gestreute Potential in der üblichen Weise als auslaufende Kugelwelle, moduliert durch den stromabhängigen Faktor, dargestellt wird.

### C) Einfluß der Atomelektronen auf den Streuvorgang

Daß im Energienenner von (12) nur die Gamma-Halbwertsbreite auftritt, liegt daran, daß bisher nur die Streuung an einem isolierten Mößbauerkern – ohne seine Elektronenhülle – betrachtet wurde. Zur Berücksichtigung dieser Elektronen müßten die Stromdichteoperatoren in (3) und (4) durch Summen von Kern- und Elektronenoperatoren ersetzt werden. Formal gelangt man zum gleichen Ergebnis, wenn man dort dem Propagator frei Photonen durch einen Propagator ersetzt, der die Streuung an Elektronen zuläßt; d. h.:

$$d_{\mu\nu} \rightarrow d_{\mu\nu}^e$$

Genauso wie in (4) für die Kerne ein Ergebnis der Form

$$D_{\mu\nu} = d_{\mu\nu} + \frac{i}{\hbar c^3} d_{\mu\epsilon} \langle \psi | \hat{N}_{\epsilon\eta} | \psi \rangle d_{\eta\nu}$$

erhalten wurde, läßt sich für die Elektronen ableiten:

$$d_{\mu\nu}^e = d_{\mu\nu} + \frac{i}{\hbar c^3} d_{\mu\epsilon} \langle \psi | \hat{E}_{\epsilon\eta} | \psi \rangle d_{\eta\nu}$$

Führt man die obige Ersetzung durch – wobei beachtet werden muß, daß die Propagatoren auch in den Operator  $\hat{N}$  eingehen –, so ergibt sich (Prozesse, in denen nacheinander Elektron- und Kernstreuung auftreten,

können wegen ihrer geringen Wahrscheinlichkeit vernachlässigt werden):

$$D_{\mu\nu} = d_{\mu\nu} + \frac{i}{\hbar c} d_{\mu\epsilon} \langle \Psi | \hat{E}_{\epsilon\eta} + \hat{N}'_{\epsilon\eta} | \Psi \rangle d_{\eta\nu} \quad (13)$$

mit

$$\hat{N}'_{\mu\nu} = T \hat{J}'_{\mu} \hat{G}' \hat{J}'_{\nu}$$

$$\hat{G}' = 1 + \left( \frac{i}{\hbar c^3} \hat{J}'_{\epsilon} d_{\epsilon\eta} \hat{J}'_{\eta} + \frac{i}{\hbar c^3} \hat{J}'_{\epsilon} d_{\epsilon\eta} \hat{E}_{\eta\mu} d_{\mu\nu} \hat{J}'_{\nu} \right) \hat{G}'$$

Der zusätzliche Term in  $D_{\mu\nu}$  berücksichtigt die Möglichkeit einer Elektronstreuung, der neue Term in der Definitionsgleichung von  $\hat{G}'$  liefert in (12) einen weiteren Beitrag zur Halbwertsbreite, der die Möglichkeit des Zerfalls über den Konversionskanal beschreibt.

Die Berechnung von  $\hat{E}$  gestaltet sich schwieriger als die des entsprechenden Kernoperators, da für die zu bildenden Matrixelemente ein Kontinuum von Zuständen mit positiver und negativer Energie berücksichtigt werden muß. Beschränkt man sich auf die Ordnung proportional zu  $e^2$ , was für Mößbauerenergien gerechtfertigt ist, so lautet das zusätzliche Matrixelement in (13):

$$E_{\mu\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \sum_{kp} \frac{1}{c^2} \frac{j_{\mu}^k(\mathbf{r}) j_{\nu}^p(\mathbf{r}')}{\hbar\omega_0 - \epsilon_p + \epsilon_k + i\eta} + \frac{j_{\mu}^k(\mathbf{r}) j_{\nu}^p(\mathbf{r}')}{-\hbar\omega_0 - \epsilon_p + \epsilon_k + i\eta}$$

k: besetzte  
p: unbesetzte Zustände

Das infinitesimale  $i\eta$  sorgt für die "richtige" mathematische Behandlung der Singularitäten, wobei "richtig" wie eingangs definiert ist durch die Bedingung, die Wechselwirkung habe im Unendlichen zu verschwinden. Da hier das Augenmerk auf dem Streuverhalten der Kerne liegen soll, sei in den weiteren Ausführungen nur der kernabhängige Summand in (13) weiter untersucht, mit der Vereinbarung, im Endergebnis den auf die Elektronstreuung zurückgehenden Term, der z. B. bei /11/ berechnet wird, hinzuzufügen.

### D) Berechnung der Kernstrommatrixelemente

Die Gleichung für das gestreute Potential (12) enthält noch die unbekannt Matrixelemente der Kernstromoperatoren. Sie können auf  $\Gamma_{\gamma}$  zurückgeführt werden, wenn man die  $j_{\epsilon}(\vec{k})$  nach Multipolordnungen entwickelt. Dies wird erleichtert, wenn man die  $j_{\nu}^{ab}(\vec{k})$  auf ihre Komponenten senkrecht zu  $\vec{k}$   $j_{\perp}^{ab}(\vec{k})$  zurückführt. Dies ist möglich, da  $\hat{J}'_{\nu}(\mathbf{x})$  der Kontinuitätsgleichung genügt:

$$\nabla_{\nu} \hat{J}'_{\nu}(\mathbf{x}) = 0$$

$$\Rightarrow j_{\perp}^{ab}(\vec{k}) \frac{E_a - E_b}{\hbar c} = -j_{\parallel}^{ab}(\vec{k}) k$$

Damit wird

$$j_{\perp}^{it}(\frac{\omega}{c}, \Omega) j_{\perp}^{jt}(\frac{\omega}{c}, -\Omega) = j_{\perp}^{it}(\frac{\omega}{c}, \Omega) j_{\perp}^{jt}(\frac{\omega}{c}, -\Omega)$$

und für die Gamma-Halbwertsbreite ergibt sich:

$$\Gamma_{\gamma} = \frac{1}{2\pi c^3} \int \omega^{it} j_{\perp}^{it}(\frac{\omega}{c}, \Omega) j_{\perp}^{jt}(\frac{\omega}{c}, -\Omega) d\Omega \quad (14)$$

Mit der Lorentzzeichnung gilt eine entsprechende Beziehung für die Felder. Für ebene Wellen heißt dies

$$\nabla_{\nu} A_{\nu}(\mathbf{x}) = 0$$

$$\Rightarrow a_{\perp}^{ab} = -a_{\parallel}^{ab} k_0$$

und in der Nähe der Resonanz folgt so:

$$j_{\perp}^{bo}(\vec{k}_0) a_0 = j_{\perp}^{bo}(\vec{k}_0) \frac{1}{k_0}$$

Aus analogen Gründen ist auch vom gestreuten Potential nur die senkrechte Komponente wirksam, wenn es mit dem Detektor oder einem weiteren streufähigen System in Wechselwirkung tritt. Deswegen läßt sich für den Faktor  $F_{\mu\nu}^n$  aus (12) schreiben:

$$F_{\mu\nu}^n(\vec{k}_0, \vec{k}_0) = F_{\perp}^n(\vec{k}_0, \vec{k}_0) = \sum_b \frac{1}{c^2} \frac{j_{\perp}^{ba}(\vec{k}_0) j_{\perp}^{ab}(\vec{k}_0)}{E_b - E_a - \hbar\omega_0 - i\eta/2} \langle \chi_0 | e^{-i\vec{k}_0 \hat{R}} | \chi_0 \rangle \langle \chi_0 | e^{i\vec{k}_0 \hat{R}} | \chi_0 \rangle$$

Nun beschreiben aber die Matrixelemente  $j_{\perp}^{ab}(\vec{k})$  die Ankopplung der ein- bzw. auslaufenden Welle an die Kernstromdichten. Der auf das Photon

zurückgehende Faktor  $e^{\pm i\vec{k}\vec{x}}$  kann nach Photoneigenfunktionen zu Drehimpuls und Parität entwickelt werden, wobei wegen der Transversalität des Photons nur gewisse Linearkombinationen dieser Eigenfunktionen zu verschiedenem L eingehen. Die so gewonnenen Basisfunktionen der Multipolentwicklung sind die Vektorkugelfunktionen /12/, und es gilt:

$$\hat{j}_L(\vec{x}) e^{-i\vec{k}\vec{x}} = \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{L=|\lambda|}^{\infty} (\hat{j}_L(\vec{x}) \bar{A}_{LM}^{\lambda}(\vec{x})) \bar{Y}_{LM}^{\lambda}(\vec{k})$$

In dieser Entwicklung klassifiziert  $\lambda = 0, 1$  magnetische und elektrische Multipolstrahlung, L gibt deren Ordnung. Die verwendeten Vektorkugelfunktionen lassen sich aus Ableitungen der üblichen Kugelfunktionen gewinnen:

$$\begin{aligned} \bar{Y}_{LM}^{\lambda}(\hat{n}) &= Y_{LM}^{\lambda}(\hat{n})_{\theta} \hat{e}_{\theta} + Y_{LM}^{\lambda}(\hat{n})_{\varphi} \hat{e}_{\varphi} \\ Y_{LM}^0(\hat{n})_{\theta} &= i Y_{LM}^0(\hat{n})_{\varphi} = \frac{1}{\sqrt{L(L+1)}} \frac{\partial}{\partial \theta} Y_{LM}(\Omega) \\ Y_{LM}^1(\hat{n})_{\varphi} &= -i Y_{LM}^0(\hat{n})_{\theta} = \frac{1}{\sqrt{L(L+1)}} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} Y_{LM}(\Omega) \end{aligned} \quad (15)$$

Die explizite Form der Multipolpotentiale  $A_{LM}^{\lambda}$  ist hier nicht wichtig, sondern allein ihre Eigenschaft, Tensoren vom Rang L zu bilden, die die Anwendung des Wigner-Eckart-Theorems gestattet /13/:

$$\begin{aligned} \langle a | \int \bar{j}(\vec{x}) \bar{A}_{LM}^{\lambda}(\vec{x}) d^3x | b \rangle &= \\ \langle a | j_{\theta} m_{\theta} | \int \bar{j}(\vec{x}) \bar{A}_{LM}^{\lambda}(\vec{x}) d^3x | b | j_{\varphi} m_{\varphi} \rangle &= \\ C(l j_{\theta} L j_{\varphi} m_{\theta} M m_{\varphi}) X(L, \lambda) \end{aligned}$$

(CL: Clebsch-Gordan-Koeffizient)

Die reduzierten Matrixelemente X lassen sich auf die Gamma-Halbwertsbreite für den entsprechenden Multipolübergang zurückführen, denn, setzt man die Entwicklung in (14) ein, so folgt,

$$\Gamma_Y^i = \frac{1}{2\pi c^3} \sum_{\lambda} \omega^4 \sum_{L} \sum_{M} \sum_{\lambda'} \langle i | \int \bar{j}(\vec{x}) \bar{A}_{LM}^{\lambda}(\vec{x}) d^3x | f \rangle \times \langle f | \int \bar{j}(\vec{x}) \bar{A}_{LM}^{\lambda}(\vec{x}) d^3x | i \rangle \int \bar{Y}_{LM}^{\lambda}(\Omega) \bar{Y}_{LM}^{\lambda*}(\Omega) d\Omega$$

und mit der Orthonormalität der Vektorkugelfunktionen:

$$= \frac{1}{2\pi c^3} \sum_{\lambda} \omega^4 \sum_{L} \sum_{M} C(l j_i L j_f m_i M m_f)^2 |X(L, \lambda)|^2$$

Mößbauerniveaus sind üblicherweise die ersten angeregten Niveaus von Kernen, so daß als Endzustand nur ein Zustand zur Verfügung steht. Eine etwa vorhandene Aufspaltung der Unterzustände ist klein gegen die mittlere Übergangsenergie, und die Übergangsfrequenz kann als konstant betrachtet werden. Die Summation über die Clebsch-Gordan-Koeffizienten läßt sich dann ausführen:

$$\begin{aligned} \Gamma_Y^i &= \frac{\omega_b}{2\pi c^3} \sum_{\lambda} \sum_L |X(L, \lambda)|^2 \\ &= \sum_{\lambda} \sum_L \Gamma_Y^i(L, \lambda) \end{aligned}$$

Deshalb kann man unter der Voraussetzung, daß die Phasen der reduzierten Matrixelemente herausfallen (hinreichende Bedingung: Zeitumkehrinvarianz oder reiner Übergang) schreiben:

$$\begin{aligned} \sum_b \frac{1}{c^2} \frac{[j_b^{\theta}(-\vec{k}_f)]_{\theta} [j_b^{\varphi}(\vec{k}_i)]_{\varphi}}{E_b - E_i - \hbar\omega_0 - i\Gamma/2} &= \\ \frac{2\pi c}{\omega_0} \sum_{\lambda} \sum_{L'} \sum_{L''} \sum_{M'} \sum_{M''} \frac{\bar{Y}_{LM}^{\lambda}(\Omega_f) \bar{Y}_{LM}^{\lambda*}(\Omega_i)}{E_b - E_i - \hbar\omega_0 - i\Gamma/2} \\ \times C(l j_{\theta} L j_{\varphi} m_{\theta} M m_{\varphi}) C(l j_{\theta} L j_{\varphi} m_{\theta} M' m_{\varphi}') (\Gamma_Y^i(L, \lambda) \Gamma_Y^i(L', \lambda'))^{1/2} \end{aligned}$$

Auch  $\Gamma^b$  ist in der Regel von den magnetischen Quantenzahlen unabhängig. Für kohärente Streuung muß außerdem  $M = M'$  sein. Mit diesen Vereinfachungen wird das gestreute Potential schließlich:

$$\bar{A}_1^i(\vec{z}) = \frac{1}{|\vec{z}|} e^{i(\vec{k}_f \vec{z} - \omega_0 z)} \bar{F}(-i\vec{\nu}, \vec{k}_0) \hat{a}_i$$

wobei gemäß C) zu setzen ist:

$$\bar{F}(\vec{k}_f, \vec{k}_0) \equiv \bar{F}_n(\vec{k}_f, \vec{k}_0) + \bar{F}_{\theta}(\vec{k}_f, \vec{k}_0)$$

mit

$$\begin{aligned} \bar{F}_n(\vec{k}_f, \vec{k}_0) &= \frac{4\pi}{k_0} \sum_{\lambda} \sum_{L} \sum_{M} \frac{(\Gamma_Y(L, \lambda) \Gamma_Y(L', \lambda'))}{\Gamma} \frac{\bar{Y}_{LM}^{\lambda}(\Omega_f) \bar{Y}_{LM}^{\lambda*}(\Omega_i)}{2(E_b - E_i - \hbar\omega_0)/\Gamma - i} \\ &\times \langle \chi_0 | e^{-i\vec{k}_f \vec{R}_1} | \chi_0 \rangle \langle \chi_0 | e^{i\vec{k}_0 \vec{R}_1} | \chi_0 \rangle C(l j_{\theta} L j_{\varphi} m_{\theta} M m_{\varphi}) C(l j_{\theta} L j_{\varphi} m_{\theta} M m_{\varphi}) \end{aligned} \quad (16)$$

und

$$\bar{F}_{\theta}(\vec{k}_f, \vec{k}_0) = \langle \chi_0 | e^{-i(\vec{k}_f - \vec{k}_0) \vec{R}_1} | \chi_0 \rangle (-r_0 F(2\theta) + i k_0 / (4\pi) \sigma_{ph})$$

Dabei ist F( $\Phi$ ) der Atomstrukturfaktor, tabelliert bei /14/, und  $\sigma_{ph}$  der



Wirkungsquerschnitt für Photoeffekt. Zusammenstellung in /15/.  $r_0$  ist der klassische Elektronenradius und  $\Theta_B$  der halbe Winkel zwischen  $\vec{k}_0$  und  $\vec{k}_f$ . Die Streulänge für Streuung des Amplitudenanteils in  $\hat{\epsilon}_0$ -Richtung in den  $\hat{\epsilon}_f$ -Polarisationsanteil erhält man nun gemäß:

$$f(\vec{k}_f, \hat{\epsilon}_f, \vec{k}_0, \hat{\epsilon}_0) = \hat{\epsilon}_f^* \vec{F}(\vec{k}_f, \vec{k}_0) \hat{\epsilon}_0$$

E) Statistische Einflüsse auf die Streulänge

Erfolgt die Streuung nicht an einem einzelnen Atom, sondern an mehreren, so müssen nicht alle, sondern eventuell nur ein Prozentsatz  $p$  von ihnen resonanzfähig sein. Diese können dann verschiedene Unterzustände des  $j_0$ -Grundzustandes besetzen. Es ist also eine Mittelung über die Streuatome in Hinsicht auf Resonanzfähigkeit und Anfangszustand durchzuführen. Dies liefert, gleiche Besetzung der  $m_0$ -Unterzustände vorausgesetzt, eine mit  $p/(2j_0 + 1)$  gewichtete Summation über die Streulänge.

Weiterhin sind die Gitterschwingungen des Festkörpers, den die Atome bilden, zu berücksichtigen. Es ist also ein Streuensembel zu betrachten, in dem die einzelnen Schwingungsmoden im thermischen Gleichgewicht gemäß der Boltzmannstatistik besetzt sind. Der entsprechende Mittelwert über den schwingungsabhängigen Teil der Streulänge ist für die Kerne

$$R_n \equiv \langle e^{-i\vec{k}_f \cdot \vec{R}} \rangle_T \langle e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{R}} \rangle_T = \langle e^{-i\vec{k}_0 \cdot \vec{R}} \rangle_T \langle e^{i\vec{k}_f \cdot \vec{R}} \rangle_T$$

und für die Elektronen:

$$R_e = \langle e^{i(\vec{k}_0 - \vec{k}_f) \cdot \vec{R}} \rangle_T = \langle e^{i2\sin\Theta_B k_0 \hat{x}} \rangle_T$$

Nach dem Blochschen Theorem /16/ ist

$$\langle e^{ikx} \rangle_T = e^{-1/2 k^2 \langle \hat{x}^2 \rangle_T}$$

und man erhält:

$$R_n = e^{-k_0^2 \langle \hat{x}^2 \rangle_T}, R_e = e^{-2k_0^2 \sin^2 \Theta_B \langle \hat{x}^2 \rangle_T} = R_n^2 \sin^2 \Theta_B$$

Unter Annahme des Debye-Modells führt das zu der Debye-Waller-Faktor genannten Form /17/:

$$R_n = e^{-\left(\frac{\hbar k_0}{2M}\right)^2 \frac{3}{2k_B \Theta_D} \left(1 + 4(T/\Theta_D)^2 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x dx}{e^x - 1}\right)}$$

( $T$ : Temperatur,  $\Theta_D$ : Debye-Temperatur,  $M$ : Atommasse,  $k_B$ : Boltzmannk.)

F) Spezielle Eigenschaften der Streulänge für den 14,4 keV Übergang im  $^{57}\text{Fe}$

$^{57}\text{Fe}$  ist wegen seines großen Debye-Waller-Faktors, des einfachen Niveauschemas, seiner relativen Häufigkeit und wegen der praktikablen Lebensdauer der zugehörigen  $^{57}\text{Co}$ -Quelle sowie seiner geringen Linienbreite ein vielbenutzter Mößbauerkern. Abbildung 5 zeigt das Zerfallsschema einer  $^{57}\text{Co}$ -Quelle und das Niveauschema des  $^{57}\text{Fe}$ .

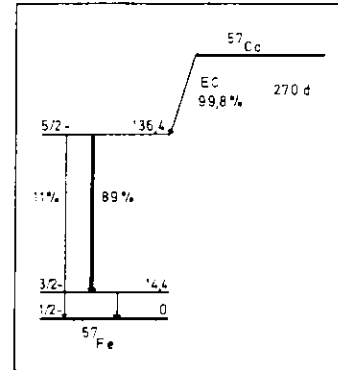


Abb. 5 Zerfallsschema  $^{57}\text{Co}$

Der Übergang zwischen Grund- und erstem angeregten Zustand ist der interessierende Mößbauerübergang. In Tabelle 3 sind die wichtigsten Eigenschaften dieses Übergangs und der beteiligten Niveaus zusammengestellt /18/.

$E_\gamma$	= 14,41303 keV
$t_{1/2}$	= 97,81 ns
$\alpha$	= 8,21
$j_0$	= 1/2; $g_0 = 0,0904 / j_0$
$j_b$	= 3/2; $g_b = -0,1549 / j_b$

Tab. 3 Mößbauerdaten des  $^{57}\text{Fe}$

Das emittierte Strahlungsfeld hat reinen magnetischen Dipolcharakter. Damit wird in (16)  $\lambda = \lambda' = 0$  und  $L = L' = 1$ . Für die Kernstrelänge erhält man so:

$$f_n(\vec{k}_f, \hat{e}_\psi, \vec{k}_0, \hat{e}_0) = \frac{\rho}{2j_0 + 1} \frac{4\pi R_n \Gamma_Y}{k_0} \sum_{m_0} \sum_{m_M} C1(j_0, m_0, M, m_M)^2 \times \frac{\hat{e}_f^* \bar{Y}_{1M}^0(\Omega_f) \bar{Y}_{1M}^{0*}(\Omega_0) \hat{e}_0}{2(E_b - E_0 - \hbar\omega)/\Gamma - i} \quad (17)$$

i) Ohne äußere Felder sind die Energien von den magnetischen Quantenzahlen unabhängig, und die Summation über die C1-Koeffizienten kann ausgeführt werden ( $\Gamma = (1 + \alpha) \Gamma_Y$ ):

$$f_n(\vec{k}_f, \hat{e}_\psi, \vec{k}_0, \hat{e}_0) = \frac{4}{3} \frac{1}{1 + \alpha} \frac{\rho \lambda_0 R_n}{2(E_b - E_0 - \hbar\omega)/\Gamma - i} \sum_M \hat{e}_f^* \bar{Y}_{1M}^0(\Omega_f) \bar{Y}_{1M}^{0*}(\Omega_0) \hat{e}_0 \quad (18)$$

Die Vektorkugelfunktionen sind in diesem Fall gegeben als:

$$Y_{1M}^0(\Omega)_\psi = i \sqrt{\frac{3}{16\pi}} (M \cos\theta e^{iM\psi} + \delta_{M0} \sqrt{2} \sin\theta)$$

$$Y_{1M}^0(\Omega)_\theta = \sqrt{\frac{3}{16\pi}} M^2 e^{iM\psi}$$

Im weiteren sei folgende Polarisationsbasis vereinbart:  $\hat{e}_\sigma^f = \hat{e}_\sigma^0$  seien Einheitsvektoren senkrecht auf der von  $\vec{k}_0$  und  $\vec{k}_f$  aufgespannten Ebene.  $\hat{e}_\pi^f$  bzw.  $\hat{e}_\pi^0$  stehen senkrecht auf  $\vec{k}_f$  und  $\hat{e}_\sigma^f$  bzw.  $\vec{k}_0$  und  $\hat{e}_\sigma^0$ , wobei die beiden Tripel jeweils Rechtssysteme bilden.

Ohne äußere Felder ist schließlich keine Quantisierungsachse ausgezeichnet, sie kann deshalb wie in Abbildung 6 angegeben gewählt werden. In diesem Fall sind also

$$\Omega_0 = (\theta_B, \pi) \quad , \quad \Omega_f = (\theta_B, 0)$$

und für die Vektorkugelfunktionen folgt

$$Y_{1M}^0(\Omega_0)_\theta = \sqrt{\frac{3}{16\pi}} M^2 = -Y_{1M}^0(\Omega_f)_\theta$$

$$Y_{1M}^0(\Omega_0)_\psi = i \sqrt{\frac{3}{16\pi}} (-M \cos\theta_B + \delta_{M0} \sqrt{2} \sin\theta_B)$$

$$Y_{1M}^0(\Omega_f)_\psi = i \sqrt{\frac{3}{16\pi}} (M \cos\theta_B + \delta_{M0} \sqrt{2} \sin\theta_B)$$

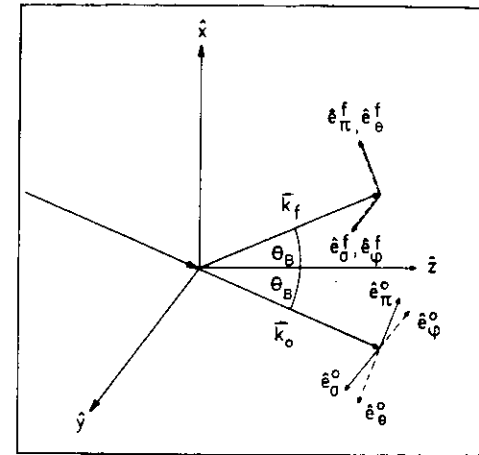


Abb. 6 Wahl der Quantisierungsachse für i) und ii)

Der winkelabhängige Teil von (18) wird so:

$$\sum_M \hat{e}_f^* \bar{Y}_{1M}^0(\Omega_f) \bar{Y}_{1M}^{0*}(\Omega_0) \hat{e}_0 = \frac{3}{8\pi} (\delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma\pi} + \delta_{\beta\sigma} \delta_{\gamma\sigma} \cos 2\theta_B)$$

$$f_n(\vec{k}_f, \hat{e}_\psi, \vec{k}_0, \hat{e}_0) = \frac{\lambda_0 \rho}{2\pi} \frac{R_n}{1 + \alpha} \frac{(k_f \times \hat{e}_\psi)(k_0 \times \hat{e}_0)}{2(E_b - E_0 - \hbar\omega)/\Gamma - i}$$

Bezüglich dieser Polarisationsbasis ist die Strelänge also diagonal und für  $\theta_B = \pi/4$  wird ausschließlich die  $\pi$ -Polarisation gestreut.

ii) Sind äußere Felder vorhanden, so sind die Zustände in der Regel energetisch aufgespalten, und die Resonanzen müssen einzeln betrachtet werden. Die dabei auftretenden C1-Koeffizienten haben folgende Werte:

$$C1(1/2, 1, 3/2, \sqrt{2}, \sqrt{2}, \pi, \pi) = 1$$

$$C1(1/2, 1, 3/2, \sqrt{2}, 0, \pi/2) = \sqrt{\frac{2}{3}}$$

$$C1(1/2, 1, 3/2, \sqrt{2}, \pi/2, \pi) = \sqrt{\frac{1}{3}}$$

Die Form des Energienenners (17) hängt von der Art des Feldes ab. Hier sei nur der Fall eines reinen Magnetfeldes diskutiert. Dann ist die Wechselwirkungsenergie gegeben durch:

$$\Delta E(m) = -mgH\mu_K$$

Der energieabhängige Term wird damit ( $E_b^0 - E_o^0$  sei die Energiedifferenz ohne Aufspaltung):

$$E_b - E_o - \hbar\omega_o = E_b^0 - E_o^0 - \hbar\omega_o - H(m_b g_b - m_o g_o) \mu_K$$

und liegt das Feld in Richtung der in i) gewählten  $\hat{z}$ -Achse, so erhält man für die Winkelabhängigkeiten:

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{10}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{10}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = \frac{3}{16\pi} (\delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma\pi} + \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} \cos^2 \Theta_B \pm i \cos \Theta_B (\delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma o} - \delta_{\beta o} \delta_{\gamma\pi}))$$

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{10}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{10}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = -\frac{3}{8\pi} \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} \sin^2 \Theta_B$$

Hier sind nur die  $M=0$ -Übergänge diagonal. Für die übrigen kann dies erreicht werden mittels der Wahl  $\Theta_B = \pi/2$ . Zwei Übergänge streuen dann nur  $\sigma$ - und vier nur  $\pi$ -Polarisation. Für  $\Theta_B = 0$  sind die  $M=0$ -Übergänge nicht an der Streuung beteiligt. Die Polarisationsabhängigkeit der  $M = \pm 1$ -Übergänge lautet dann:

$$\frac{3}{16\pi} (\delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma\pi} + \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} \pm i (\delta_{\beta o} \delta_{\gamma\pi} - \delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma o})) = \frac{3}{8\pi} \frac{\mp (\delta_{\beta\pi} \pm i \delta_{\beta o})}{\sqrt{2}} \frac{\mp (\delta_{\gamma\pi} \pm i \delta_{\gamma o})}{\sqrt{2}}$$

Diese Übergänge sind also in einer zirkularen Polarisationsbasis

$$\hat{e}_{\pm 1} = \mp (\hat{e}_{\pi} \pm i \hat{e}_o) / \sqrt{2}$$

diagonal. Bei Vorwärtsstreuung streuen daher die  $M=1$ -Übergänge nur rechts-, die  $M=-1$ -Übergänge nur linkszirkulare Photonen.

iii) Liegt  $H$  senkrecht zur von  $\vec{k}_o$  und  $\vec{k}_f$  aufgespannten Ebene, wie in Abbildung 7 gezeigt, so ergeben sich folgende Omega und Vektorkugelfunktionen

$$\Omega_o = (\pi/2, 2\pi - \Theta_B), \quad \Omega_f = (\pi/2, \Theta_B)$$

$$Y_{1M}^o(\Omega_o)_{\Theta} = \sqrt{\frac{3}{16\pi}} M^2 e^{-iM\Theta_B} = Y_{1M}^o(\Omega_f)_{\Theta}$$

$$Y_{1M}^o(\Omega_o)_{\Psi} = i \sqrt{\frac{3}{8\pi}} \delta_{M0} = Y_{1M}^o(\Omega_f)_{\Psi}$$

und mit den entsprechenden Einheitsvektoren erhält man für die Winkelabhängigkeit

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{10}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{10}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = \frac{3}{8\pi} \delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma\pi}$$

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{11}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{11}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = \frac{3}{16\pi} \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} e^{\mp i 2\Theta_B}$$

Bei dieser Wahl des Feldes wird die Streulänge, diesmal für beliebige Winkel, ebenfalls diagonal.

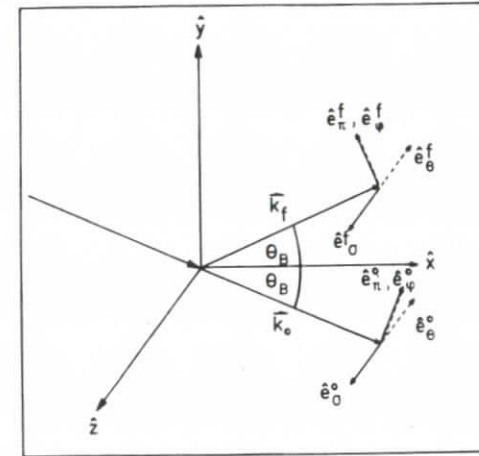


Abb. 7 Wahl der Quantisierungsachse für iii)

iv) Schließlich sei der Fall diskutiert, daß  $H$  in der von  $\vec{k}_o$  und  $\vec{k}_f$  aufgespannten Ebene liegt und senkrecht auf deren Winkelhalbierenden steht (Abb. 8). Dann gilt

$$\Omega_o = (\pi/2 + \Theta_B \pi/2), \quad \Omega_f = (\pi/2 - \Theta_B \pi/2)$$

$$Y_{1M}^o(\Omega_o)_{\Theta} = i M^2 \sqrt{\frac{3}{16\pi}} = Y_{1M}^o(\Omega_f)_{\Theta}$$

$$Y_{1M}^o(\Omega_o)_{\Psi} = i \sqrt{\frac{3}{16\pi}} (-i M \sin \Theta_B + \delta_{M0} \sqrt{2} \cos \Theta_B) = -Y_{1M}^o(\Omega_f)_{\Psi}$$

und

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{10}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{10}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = \frac{3}{8\pi} \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} \cos^2 \Theta_B$$

$$\hat{e}_{\beta}^{\dagger} \bar{Y}_{11}^o(\Omega_f) \bar{Y}_{11}^o(\Omega_o) \hat{e}_{\gamma}^o = \frac{3}{16\pi} (\delta_{\beta\pi} \delta_{\gamma\pi} - \delta_{\beta o} \delta_{\gamma o} \sin^2 \Theta_B)$$

Auch hier ist also die Streulänge diagonal.

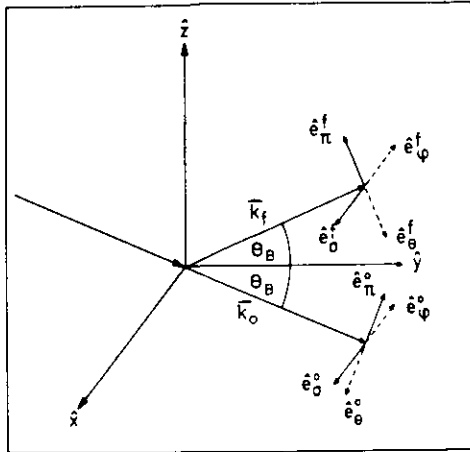


Abb. 8 Wahl der Quantisierungsachse für (iv)

Dies ist für Feldrichtungen, die von diesen einfachen Fällen abweichen, auch für andere Wahlen einer orthogonalen Polarisationsbasis nicht gegeben. In (17) tragen dann auch polarisationsmischende Terme bei.

#### IV. Braggstreuung an dünnen <sup>57</sup>Fe-Einkristallen

In einer Theorie der Kernresonanz-Braggstreuung muß die Möglichkeit polarisationsmischender Streuung berücksichtigt werden. Da im weiteren die Abhängigkeit der Reflektivität von Einfallswinkel und -energie interessiert, muß eine dynamische Theorie gefunden werden, wie sie von von Laue und Ewald /19/, /20/ für die reine elektronische Streuung abgeleitet wurde. Das analoge Problem für Kernresonanzstreuung wurde von Kagan und Afanas'ev /21/, /22/ und Hannon und Trammell /23/, /24/ behandelt. Das Vorgehen der letzteren sei hier kurz charakterisiert.

##### A) Streuverhalten einer Netzebene

In einer festen Polarisationsbasis, wie der in III F eingeführten  $\sigma, \pi$ -Basis, sind die am Streuvorgang beteiligten Photonpotentiale zweikomponentige Vektoren  $\vec{A}$  und die Streulänge ist eine  $2 \times 2$  Matrix. Gemäß (12), (16) ist dann das Potential eines Photons, das von einem Streuer der Elementarzelle mit dem Ortsvektor  $\vec{r}_i$  erzeugt wird (der Phasenfaktor  $e^{-i\omega_0 t}$  sei der Übersichtlichkeit halber weggelassen):

$$\begin{aligned} \vec{A}(\vec{r}) &= \vec{A}^0(\vec{r}) + \frac{1}{|\vec{r}-\vec{r}_i|} e^{i\vec{k}_f(\vec{r}-\vec{r}_i)} \vec{f}(-i\vec{\nabla}, \hat{e}^f, \vec{k}_0, \hat{e}^o) \vec{a}^o e^{i\vec{k}_0 \vec{r}_i} \\ &= \vec{A}^0(\vec{r}) + \frac{1}{2\pi} \int \frac{e^{i\vec{k}(\vec{r}-\vec{r}_i)} d^3k}{k^2 - k_0^2 - i\epsilon} e^{i\vec{k}_0 \vec{r}_i} \vec{f}(-i\vec{\nabla}, \hat{e}^f, \vec{k}_0, \hat{e}^o) \vec{a}^o \end{aligned}$$

Befinden sich in der Elementarzelle mehrere Atome, so ist zu setzen:

$$\vec{f}(\vec{k}_f, \hat{e}^f, \vec{k}_0, \hat{e}^o) = \sum_j \vec{f}_j(\vec{k}_f, \hat{e}^f, \vec{k}_0, \hat{e}^o) e^{-i(\vec{k}_f - \vec{k}_0) \vec{p}_j}$$

wobei die  $\vec{p}_j$  die relativen Ortsvektoren innerhalb der Zelle sind.

Ohne wesentliche Beschränkung der Allgemeinheit sei hier angenommen, daß die Oberfläche des betrachteten Kristalls von einer Netzebene definiert wird. Das Koordinatensystem sei dann so gewählt, daß die z-Achse senkrecht auf ihr stehe. Absorption und Reflexion eines Strahls sind dann eng mit dem Maß des Eindringens in den Kristall in diese Richtung verbunden. Es liegt daher nahe, erst die Reflexionseigenschaften einer Netzebene senkrecht zur z-Achse zu diskutieren und die entsprechenden Eigenschaften

des Gesamtkristalls aus der regelmäßigen Anordnung vieler solcher Ebenen zu entwickeln. Da das Streuvermögen einer einzelnen Netzebene sehr klein ist, ist es gerechtfertigt, in Bornscher Näherung zu rechnen. Die gesamte gestreute Amplitude ergibt sich dann einfach als die Summe über die Beiträge der einzelnen Elementarzellen

$$\vec{A}(\vec{r}) = \vec{A}^0(\vec{r}) + \frac{1}{2\pi^2} \int \sum_i e^{i(\vec{k}_0 - \vec{k})\vec{r}_i} \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}}}{k^2 - k_0^2 - i\epsilon} d^3k \vec{f}(-i\vec{\nabla}, \hat{e}_1, \vec{k}_0, \hat{e}_0) \vec{a}_0 \quad (19)$$

$\vec{a}$  und  $\vec{b}$  seien die Basisvektoren in der x-y-Ebene, ist die Netzebene hinreichend ausgedehnt, so geht die Summe über i über in folgende Summe über  $\delta$ -Funktionen:

$$\sum_i e^{i(\vec{k}_0 - \vec{k})\vec{r}_i} = \sum_{n_1} \frac{2}{ab} \delta((k_{xy} - \vec{k}_{xy})\hat{e}_0 - n_1 \frac{2\pi}{a}) \delta((k_{xy} - \vec{k}_{xy})\hat{e}_b - n_2 \frac{2\pi}{b})$$

Demzufolge kann in (19) die Integration über  $k_x$  und  $k_y$  ausgeführt werden, und man erhält:

$$\vec{A}(\vec{r}) = \vec{A}^0(\vec{r}) + \frac{2}{F} \sum_p e^{i(\vec{k}_{xy}^0 + \vec{\tau}_p)\vec{r}} \int \frac{e^{ik_z z}}{k_z^2 - (k_{xy}^0 + \vec{\tau}_p)^2 - i\epsilon} dk_z \vec{f}(-i\vec{\nabla}, \hat{e}_1, \vec{k}_0, \hat{e}_0) \vec{a}_0$$

Dabei ist F die von  $\vec{a}$  und  $\vec{b}$  aufgespannte Fläche und die

$$\vec{\tau}_p = \frac{2\pi}{F} (n_1 \vec{b} \times \hat{e}_z + n_2 (\hat{e}_z \times \vec{a}))$$

sind planare reziproke Gittervektoren. Das verbleibende Integral läßt sich mit Hilfe des Residuensatzes berechnen, und es folgt:

$$\vec{A}(\vec{r}) = \vec{A}^0(\vec{r}) + \frac{2\pi i}{F} \sum_p \frac{e^{i(\vec{k}_{xy}^0 + \vec{\tau}_p)\vec{r} + \sqrt{k_0^2 - (\vec{k}_{xy}^0 + \vec{\tau}_p)^2} |z|}}{k_0^2 - (\vec{k}_{xy}^0 + \vec{\tau}_p)^2} \vec{f}(-i\vec{\nabla}, \hat{e}_1, \vec{k}_0, \hat{e}_0) \vec{a}_0$$

Dies läßt sich interpretieren als eine Überlagerung ebener Wellen; dabei treten, neben der Primärwelle, oberhalb der Streuebene die Richtungen  $\vec{k}_f^{D+}$  mit positiver z-Komponente und unterhalb die Richtungen  $\vec{k}_f^{D-}$  mit negativer z-Komponente auf. Dies bewirkt, daß nur der Betrag von z ein-geht. Die Summe über p zählt die möglichen planaren reziproken Gittervektoren ab, wobei allerdings nur die p mit  $|\vec{\tau}_p + \vec{k}_{xy}^0| < k_0$  berücksichtigt zu werden brauchen, da die übrigen nur exponentiell gedämpfte Beiträge liefern.

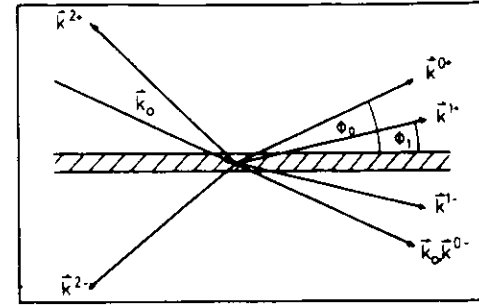


Abb. 9 Mögliche Wellenvektoren bei Streuung an einer Netzebene

Offensichtlich ist dann der Austrittswinkel  $\Phi_p$ , den der reflektierte Strahl mit der Ebene bildet, gegeben durch:

$$\sin \Phi_p = \frac{\sqrt{k_0^2 - (\vec{k}_0 + \vec{\tau}_p)^2}}{k_0}$$

F ergibt sich aus der Dichte  $\rho$  der Zellen und dem Netzebenenabstand d gemäß  $F = 1/(\rho d)$ . Damit wird das von einer Netzebene gestreute Potential schließlich:

$$\vec{A}(\vec{r}) = \vec{A}^0(\vec{r}) + \sum_{p \neq 0} e^{i\vec{k}_f^{D\pm}\vec{r}} \frac{i d \rho_0}{\sin \Phi_p} \vec{f}(\vec{k}_f^{D\pm}, \hat{e}_1, \vec{k}_0, \hat{e}_0) \vec{a}_0 \quad (20)$$

### B) Braggstreuung an einem ausgedehnten Kristall

In (20) ist noch kein Einfallswinkel  $\Phi_0$  vor den übrigen ausgezeichnet. Die möglichen Einfallswinkel werden erst durch das Hinzufügen weiterer Ebenen eingeschränkt, da die reflektierten Amplituden phasengerecht addiert werden müssen und sich nur für bestimmte Richtungen von  $\vec{k}_0$  (und damit auch von  $\vec{k}_f^{D\pm}$ ) konstruktive Interferenz ergibt. Im Braggfall liegt in der Regel nur für ein  $\vec{k}_f^{D+}$  die Möglichkeit zu konstruktiver Interferenz vor. Für  $z < 0$  ist die Richtung  $\vec{k}_f^{D-}$  immer möglich, da es sich um Vorwärtsstreuung handelt, bei der die Phasenlage immer richtig ist. Dieser Kanal interferiert mit dem direkten Strahl und schwächt ihn in einer Weise, daß die Energie-

erhaltung gewährleistet ist. Im folgenden sei  $\vec{k}_f^{(0)}$  mit  $\vec{k}_r$  abgekürzt und entsprechend  $\vec{k}_f^{(0)}$  mit  $\vec{k}_o$ . Die gitterabhängigen Faktoren werden zusammengefaßt zu:

$$\frac{d\rho\lambda_0}{\sin\phi_{o,r}} \tilde{f}(\vec{k}_{o,r}, \hat{e}^{o,r}, \vec{k}_r, \hat{e}^r) \equiv \tilde{F}^{o,r}$$

Im ausgedehnten Kristall kann der reflektierte Strahl von einer höherliegenden Netzebene gestreut werden. In diesem Fall ist also  $\vec{k}_r$  der einfallende Strahl, und diese Streuung wird beschrieben von der Matrix:

$$\frac{d\rho\lambda_0}{\sin\phi_{o,r}} \tilde{f}(\vec{k}_{o,r}, \hat{e}^{o,r}, \vec{k}_r, \hat{e}^r) \equiv \tilde{F}^{o,r}$$

Zieht man weiter die nicht z-abhängigen Phasenfaktoren in die Amplituden und bezeichnet mit  $\tilde{T}$  die entsprechende Größe für die  $\vec{k}_o$ -Richtung und ebenso  $\tilde{R}$  für die  $\vec{k}_r$ -Richtung, so lassen sich in einfacher Form diese Amplituden an der m-ten Schicht eines aus vielen äquidistanten Netzebenen bestehenden Kristalls angeben

$$\tilde{T}_m = e^{ik_0 \sin\phi_0 d} (\tilde{T}_{m-1} + i\tilde{F}^{oo} \tilde{T}_{m-1} + i\tilde{F}^{or} \tilde{R}_{m-1}) \quad (21)$$

$$\tilde{R}_m = e^{ik_0 \sin\phi_0 d} (\tilde{R}_{m-1} + i\tilde{F}^{rr} \tilde{R}_{m-1} + i\tilde{F}^{ro} \tilde{T}_{m-1})$$

Da der Einfallsstrahl  $\vec{k}_o$ -Richtung hat, ist  $\tilde{T}_0 = a^{-1} e^{ik_{xy}^0 \vec{r}} = A^0$ , und hat die unterste Schicht den Index M, ist  $\tilde{R}_M = 0$ . Die Form der Gleichung (21) legt eine exponentielle m-Abhängigkeit der Amplituden nahe. Der Ansatz

$$\begin{aligned} \tilde{T}_m &= \sum_{\vec{k}} \tilde{T}_{\vec{k}} e^{im\vec{k}d} \\ \tilde{R}_m &= \sum_{\vec{k}} \tilde{R}_{\vec{k}} e^{im\vec{k}d} \end{aligned}$$

führt (21) über in

$$((e^{-i(k_0 \sin\phi_0 - k')d} - 1) \tilde{T}_{\vec{k}'} - i\tilde{F}^{oo}) \tilde{T}_{\vec{k}'} - i\tilde{F}^{or} \tilde{R}_{\vec{k}'} = 0 \quad (22)$$

$$-i\tilde{F}^{ro} \tilde{T}_{\vec{k}'} + ((e^{-i(k_0 \sin\phi_0 - k')d} - 1) \tilde{T}_{\vec{k}'} - i\tilde{F}^{rr}) \tilde{R}_{\vec{k}'} = 0$$

In Polarisationskomponenten geschrieben sind dies vier Gleichungen für die je zwei Komponenten der transmittierten und reflektierten Amplituden  $T_{\vec{k}'}^\sigma, T_{\vec{k}'}^\pi, R_{\vec{k}'}^\sigma, R_{\vec{k}'}^\pi$ . Zur Lösbarkeit dieses Gleichungssystems ist zu fordern:

$$\det \begin{bmatrix} (e^{-i(k_0 \sin\phi_0 - k')d} - 1) \tilde{T}_{\vec{k}'} - i\tilde{F}^{oo} & -i\tilde{F}^{or} \\ -i\tilde{F}^{ro} & (e^{-i(k_0 \sin\phi_0 - k')d} - 1) \tilde{T}_{\vec{k}'} - i\tilde{F}^{rr} \end{bmatrix} = 0 \quad (23)$$

Die sich so ergebende Gleichung in  $k'$  ist das Analogon der Dispersionsgleichung in der Dynamischen Theorie der Elektronstreuung. Sie legt die vier möglichen Werte des komplexen  $k'$  fest. Für diese  $k'$  sind nur noch drei der Gleichungen (22) linear unabhängig, die für die vier  $k'$  insgesamt 12 Gleichungen für die 16 Komponenten der Amplituden liefern. Die fehlenden vier Gleichungen zu ihrer eindeutigen Bestimmung liefern die Randbedingungen:

$$\begin{aligned} \tilde{T}_0 &= A^0 = \sum_{\vec{k}'} \tilde{T}_{\vec{k}'} \\ \tilde{R}_M &= 0 = \sum_{\vec{k}'} \tilde{R}_{\vec{k}'} e^{iM\vec{k}d} \end{aligned}$$

Im Braggfall interessiert die reflektierte Amplitude.  $\tilde{R}_0$  ist die Amplitude, die von unten auf die oberste Schicht fällt. In der Regel ist der betrachtete Kristall so dick, daß der Einfluß der letzten noch zu durchquerenden Schicht vernachlässigt werden kann.  $\tilde{R}_0$  beschreibt dann die an einem Kristall aus M Schichten reflektierte Amplitude. Das Verhältnis von reflektierter zu einfallender Intensität ist dann:

$$r_I \equiv \frac{|\tilde{R}_0|^2}{|A^0|^2}$$

Das Verhältnis der entsprechenden Energieflüsse unterscheidet sich davon um einen geometrischen Faktor, der dem möglicherweise unterschiedlichen Strahlquerschnitt Rechnung trägt:

$$r_E \equiv \frac{\sin\phi_r}{\sin\phi_o} r_I$$

Für die Lösungen von (22) läßt sich im allgemeinen Fall kein geschlossener analytischer Ausdruck angeben. Die Lösungen müssen dann mit numerischen Methoden bestimmt werden. Zu diesem Zweck wurde ein FORTRAN-Programm erstellt und die Rechnungen an der IBM 370/168 des DESY durchgeführt. Abbildung 10 zeigt das Ergebnis einer Modellrechnung für Streuung an einem <sup>57</sup>Fe-Einkristall in Form eines Höhenlinien-Diagramms. In einer Winkel-Energie-Ebene sind Linien gleichen  $r_E$ 's, angegeben in Prozent, eingetragen. Die Abbildungen 11 und 12 zeigen Winkel- und Energie-schnitte durch dieses Diagramm. Die punktierte Linie zeigt den Anteil der

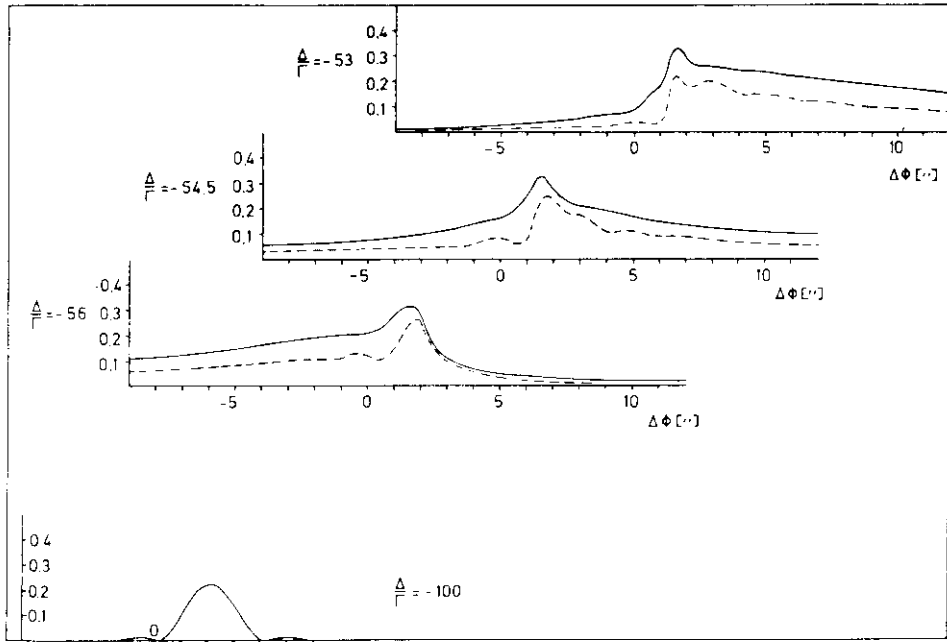


Abb. 11 Reflektivität des 322-Reflexes an 50 000 Å 111-Eisen gegen  $\Delta\Phi = \Phi - \Phi_B$

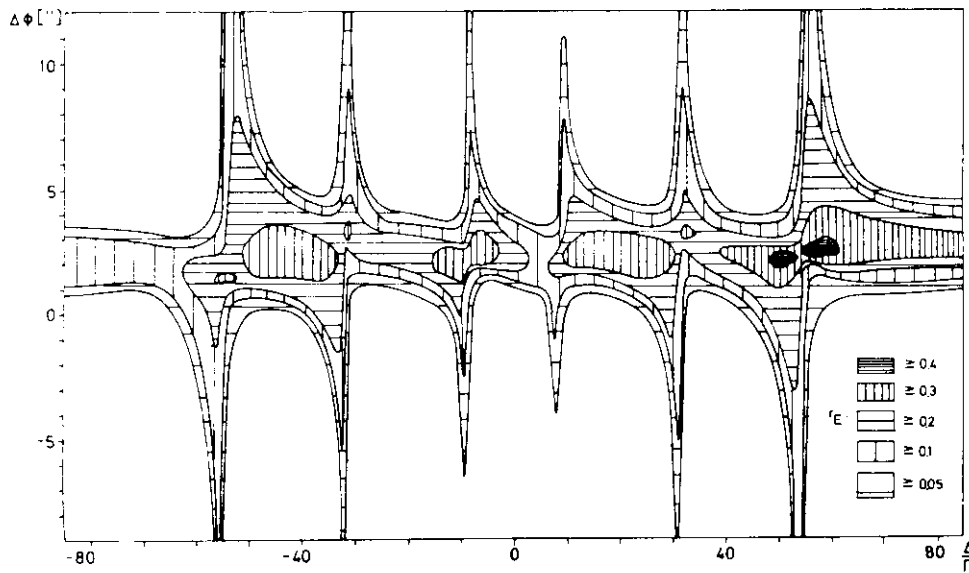
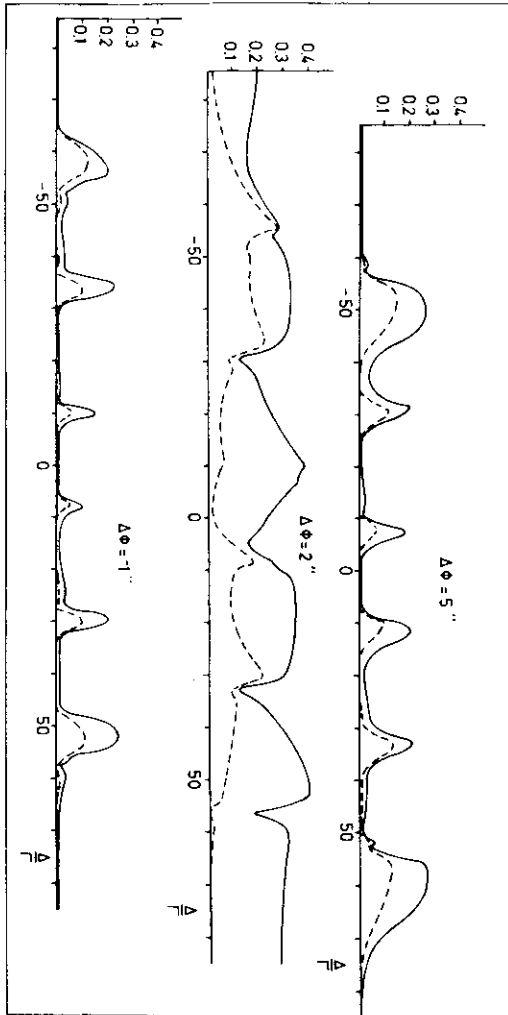


Abb. 10 Reflektivitäts-Höhenlinien des 322-Reflexes an 50 000 Å 111-Eisen

Abb. 12 Reflektivität des 322-Reflexes an 50000 Å 111-Eisen gegen  $\Delta = h\nu - E_{res}$



$\pi$ -Polarisation in der gestreuten Intensität, obwohl der Primärstrahl als vollständig  $\sigma$ -polarisiert angenommen wurde. Diese Polarisationsmischung tritt auf, da das 330 kG Hyperfeinfeld in Richtung der Winkelhalbierenden von  $\vec{k}_0$  und  $\vec{k}_f$  gelegt wurde. Es wurde der 322-Reflex unter Annahme einer 111-Oberfläche berechnet. Die Dicke des Kristalls betrug 50000 Å.

Auf einige allgemeine Charakteristika der Reflexionskurven sei hier hingewiesen. Die Schwerpunkte bezüglich der Winkelachsen sind leicht gegen die exakte Braggbedingung  $\Delta\Phi = 0$  verschoben. Dieser aus der Dynamischen Theorie der Elektronstreuung bekannte Effekt geht auf den leicht verringerten Brechungsindex innerhalb des Kristalls zurück. Die Asymmetrie der Kurven bezüglich ihres Schwerpunkts dokumentiert im wesentlichen die Interferenz zwischen Kern- und Elektronstreuung. Die Kurven haben auch noch in gewisser Distanz zum Braggwinkel annähernd Lorentzform, in der Nähe des Maximums der Reflektivität bilden sich dagegen kompliziertere Reflektivitäten mit energetischen Breiten von mehreren zehn Halbwertsbreiten aus. Hier bilden sich Anregungen von kollektiven Zuständen der Resonanzstreuer aus, deren Zerfall über den  $\gamma$ -Kanal derart beschleunigt ist, daß eine Linienverbreiterung eintritt und die inkohärenten Zerfallskanäle praktisch nicht mehr beitragen. Die analoge Situation in Transmission bei Lauegeometrie wird als Kern-Bormann-Effekt bzw. als "Suppression of inelastic Channels" bezeichnet.

### C) Nichtpolarisationsmischende Streuung an dünnen Kristallen

Läßt sich eine Polarisationsbasis finden, in der keine polarisationsmischende Streuung auftritt, so lassen sich die Lösungen von (22) angeben. In dieser Basis sind nämlich die Matrizen  $\tilde{F}$  diagonal, ihre beiden Komponenten seien durch den Index  $\lambda$  charakterisiert (gemäß III F i - iv z. B.  $\lambda = \sigma, \pi$  oder  $\lambda = \pm 1$ ). Das Gleichungssystem (22) zerfällt dann in zwei voneinander unabhängige Gleichungspaare. Die Dispersionsgleichungen lauten dann:

$$(e^{-ik_0 \sin \phi_0} - k'_\lambda) d - (1 + iF_\lambda^{\infty}) (e^{-ik_0 \sin \phi_r} - k'_\lambda) d - (1 + iF_\lambda^{rr}) + F_\lambda^{\sigma r} F_\lambda^{r\sigma} = 0 \quad (24)$$

Die geometrieabhängigen e-Faktoren führen im weiteren auf die Braggbedingung. Deshalb sei hier der Parameter  $\delta$  eingeführt gemäß:

$$k_0 d (\sin \phi_0 + \sin \phi_r) \equiv 2\pi n + 2\delta$$



$\delta$  charakterisiert dann die Abweichung von der idealen Braggbedingung, die für ein Winkelpaar  $\Phi_0^0, \Phi_r^0$  erfüllt wäre. Sei die aktuelle Winkelabweichung vom Einfallswinkel  $\Phi_0^0$   $\Delta\Phi$ , so erhält man für  $\delta$ :

$$\delta = \Delta\Phi k_0 d (\cos\Phi_0^0 + \cos\Phi_r^0) / 2$$

Für ausreichend kleine  $\delta$  können die e-Funktionen von (22) und (24) entwickelt werden, und bis auf Terme höherer Ordnung ergibt sich

$$((k_0 \sin\Phi_0 - k_\lambda^0) d + F_\lambda^{00}) ((k_\lambda^0 - k_0 \sin\Phi_0) d + 2\delta + F_\lambda^{r0}) - F_\lambda^{0r} F_\lambda^{r0} = 0$$

mit den Lösungen:

$$k_{\lambda r}^0 = k_0 \sin\Phi_0 + \delta + (F_\lambda^{00} - F_\lambda^{r0}) / 2 \pm \sqrt{(\delta + (F_\lambda^{00} + F_\lambda^{r0}) / 2)^2 - F_\lambda^{0r} F_\lambda^{r0}} / d$$

$$\approx k_0 \sin\Phi_0 + \delta + \alpha_\lambda \mp \beta_\lambda / d$$

Die Wurzel ist dabei so zu ziehen, daß  $\beta_\lambda$  einen positiven Imaginärteil hat.

Die Amplituden bestimmen sich nun aus den Gleichungen:

$$R_{k_\lambda^+} = - \frac{F_\lambda^{r0}}{\delta + \alpha_\lambda + \beta_\lambda + F_\lambda^{r0}} T_{k_\lambda^+}$$

$$R_{k_\lambda^-} = - \frac{F_\lambda^{00}}{\delta + \alpha_\lambda - \beta_\lambda + F_\lambda^{r0}} T_{k_\lambda^-}$$

$$T_{k_\lambda^+} + T_{k_\lambda^-} = A_\lambda^0$$

$$R_{k_\lambda^+} e^{i\beta_\lambda M} + R_{k_\lambda^-} e^{-i\beta_\lambda M} = 0$$

Und man erhält als Amplitudenverhältnis:

$$R_\lambda = (R_{k_\lambda^+} + R_{k_\lambda^-}) / A_\lambda^0$$

$$= \frac{F_\lambda^{00} (e^{i\beta_\lambda M} - e^{-i\beta_\lambda M})}{(\delta + \alpha_\lambda + \beta_\lambda + F_\lambda^{r0}) e^{-i\beta_\lambda M} - (\delta + \alpha_\lambda - \beta_\lambda + F_\lambda^{r0}) e^{i\beta_\lambda M}} \quad (25)$$

Für sehr dicke Kristalle geht  $e^{i\beta_\lambda M}$  gegen 0 und R strebt gegen den Grenzwert:

$$R_\lambda^* = F_\lambda^{r0} / (\delta + \alpha_\lambda + \beta_\lambda + F_\lambda^{r0})$$

Für dünne Kristalle kann man sich auf Ordnungen  $\propto F_\lambda^{r0}$  beschränken (d. h. in (25)  $\beta_\lambda \rightarrow \delta + \alpha_\lambda + F_\lambda^{r0}$ ) und erhält:

$$R_\lambda = F_\lambda^{r0} e^{i(\delta + \alpha_\lambda + F_\lambda^{r0})M} \frac{e^{i(\delta + \alpha_\lambda + F_\lambda^{r0})M} - e^{-i(\delta + \alpha_\lambda + F_\lambda^{r0})M}}{2(\delta + \alpha_\lambda + F_\lambda^{r0})}$$

Die Abhängigkeit von  $\delta$  läßt sich abschätzen, wenn man  $F_\lambda^{r0} = F_\lambda^{00} = 0$  setzt, d. h., die Einflüsse der Vorwärtsstreuung vernachlässigt. Dann wird nämlich:

$$r_\lambda = |R_\lambda|^2 = M^2 |F_\lambda^{00}|^2 \left( \frac{\sin M\delta}{M\delta} \right)^2 \quad (26)$$

Dies ist aber gerade das Beugungsbild eines M-Strichgitters, in dem die einzelnen Striche die Streustärke  $|F_\lambda^{r0}|$  haben. Bei Strichgittern ist es üblich, als Breite des Beugungsmaximums den Abstand der Werte zu benutzen, für die gilt:

$$\frac{\sin^2 y_\pm}{y_\pm^2} = \frac{4}{\pi^2} \Rightarrow y_\pm = \pm \pi / 2$$

In entsprechender Weise kann die Breite des Braggreflexes in dieser Näherung abgeschätzt werden zu:

$$\Delta\theta_B \approx \Delta\Phi, \Delta\Phi = \frac{\lambda_0}{M d (\cos\Phi_0^0 + \cos\Phi_r^0)} \quad (27)$$

Als obere Grenze der Zulässigkeit dieser Näherung ist natürlich  $M |F_\lambda^{r0}| \leq 1$  zu fordern, weil sonst die Reflektivität größer als 1 wird. Rechnungen mit (25) zeigen, daß schon für  $M |F_\lambda^{r0}| = 1$  die Abweichung von (26) beträchtlich ist, denn man erhält:

$$|R_\lambda (M |F_\lambda^{r0}| = 1)|^2 \approx 0.25$$

Immerhin liefert diese Grenze eine grobe Trennung zwischen dicken und dünnen Kristallen, und (27) liefert eine brauchbare Abschätzung der rein geometrisch bedingten Reflexbreite für dünne Kristalle.

#### D) Auswahl des Reflexes

Die möglichen Eisenreflexe, die in einem Mößbauermonochromator benutzt werden können, sind durch die begrenzten Herstellungsmöglichkeiten stark

eingeschränkt. Das epitaktische Aufdampfen von dünnen einkristallinen Eisenschichten auf einkristalline Kupfer-, Silber- und Goldsubstrate ist von mehreren Autoren untersucht worden (/25/, /26/, /27/, /28/). Leider sind die Qualitätskategorien im Bereich der Epitaxie dünner Schichten andere als die hier für den Einsatz in  $\gamma$ -optischen Geräten adäquaten. Dort werden Qualitätsaussagen in der Regel an Hand von Elektronenbeugungsbildern getroffen, deren Empfindlichkeit auf Flächen der Größenordnung  $10^{-6} \text{ cm}^2$  begrenzt ist. Dem stehen hier Wünsche nach Kristallen der Dimensionen  $\text{cm}^2$  gegenüber. Hierüber sind der Literatur keine Informationen zu entnehmen. Herr P. Lilienkamp aus der von Herrn Prof. Dr. M. Hansdorff geleiteten Gruppe des Instituts für Angewandte Physik der Universität Hamburg erklärte sich dankenswerterweise bereit, das Aufdampfen dünner Eisenschichten auf Silberunterlagen zur Klärung dieser Fragen zu übernehmen. Details der Aufdampftechnik und -apparatur werden in seiner Diplomarbeit diskutiert (/29/).

Silber wie auch Gold und Kupfer sind als fcc Kristalle sehr weich und empfindlich. Silber hat den Vorteil, daß es sich als Kristall mit 111-Oberfläche auf Glimmerplättchen aufdampfen läßt, die sich leichter handhaben lassen. Allerdings sind möglicherweise solche Glimmerplättchen in der letztlich nötigen Größe nicht mit ausreichender Qualität zu gewinnen. Deshalb wurde Herr Dr. W. Guse vom Mineralogisch-Petrographischen Institut der Universität Hamburg gebeten, große Silbereinkristalle nach dem Czochralski-Verfahren zu ziehen. Auch hier sind die 111-Oberflächen für das nachfolgende Aufdampfen am einfachsten zu präparieren.

Bei der Epitaxie bilden sich Eisenkristalle mit 110-Oberfläche. Die 001-Achse der Kristallite hat allerdings drei Orientierungsmöglichkeiten bezüglich des Silbers, nämlich parallel zur  $1\bar{1}0$ -,  $01\bar{1}$ - oder  $10\bar{1}$ -Richtung. Dementsprechend ist für unsymmetrische Eisenreflexe zu befürchten, daß zwei Drittel der Kristalloberfläche nicht richtig orientiert sind und nicht zur Reflexion beitragen. Als mögliche Reflexe verbleiben damit: 110 ( $\theta_B: 12,25^\circ$ ), 220 ( $25,11^\circ$ ), 330 ( $39,54^\circ$ ) und 440 ( $58,08^\circ$ ). Wählt man das Hyperteinfeld senkrecht zur Streuebene, so streuen die Kerne die  $\pi$ -Polarisation am stärksten (nur  $M=0$ -Übergänge beteiligt). Die horizontale Polarisation der Synchrotronstrahlung fordert dann die Streuung in der Strahlebene. Der Betrag der Kernstreuung ist in der Resonanz in diesem Fall  $5,9 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}$ . Reflexe mit großem Streuwinkel geben wegen des abnehmenden elektronischen Formfaktors bessere Unterdrückungsfaktoren.

Legt man die übliche kubische Einheitszelle zugrunde, so folgt für die Streustärken in der Resonanz  $IF_{330}^{ro, res} = 1,96 \cdot 10^{-3}$  und  $IF_{440}^{ro, res} = 1,47 \cdot 10^{-3}$ . Um 25% der Resonanzreflektivität zu erreichen, ist dann zu fordern  $M > 500$ , d. h. eine Kristalldicke von ca. 1500 Å.

Gemäß (27) ergibt sich damit eine Reflexbreite von  $100'' \approx 0,5 \text{ mrad}$ . Dies ist in diesem Fall die horizontale Akzeptanz des Systems. In vertikaler Richtung wird sie durch die Breite der Vormonochromatorreflexe bestimmt.

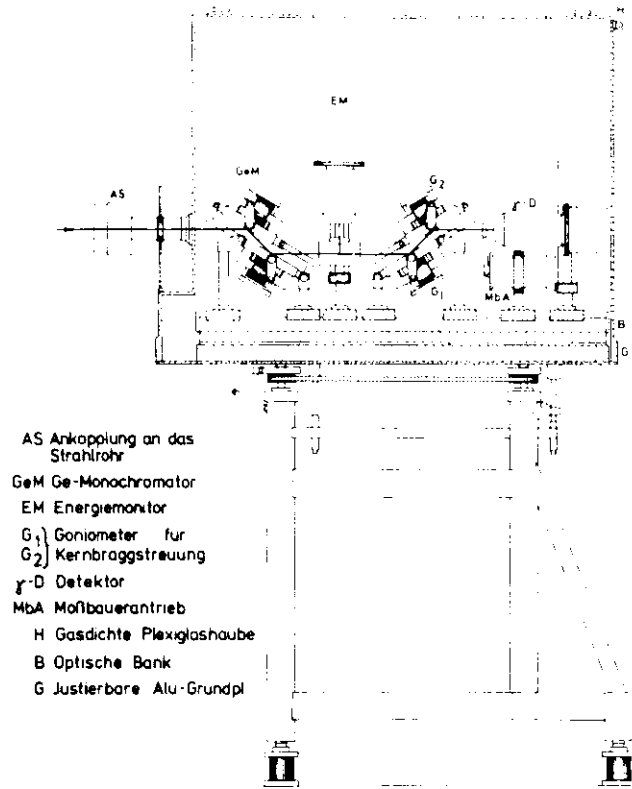
Bei Ausnutzung dieser Geometrie tritt in der Elektronenstreuung ein Polarisationsfaktor  $\cos 2\theta_B$  auf, der den 330-Reflex stärker reduziert. Man errechnet:  $IF_{330}^{ro, el} = 1,35 \cdot 10^{-5}$  und  $IF_{440}^{ro, el} = 1,52 \cdot 10^{-5}$ . Nach (26) ist der Unterdrückungsfaktor in erster Näherung gegeben durch das Quadrat der Verhältnisse der Streustärken, das liefert für 330  $4,7 \cdot 10^{-5}$  und für 440  $1,1 \cdot 10^{-4}$ . In dieser Hinsicht erweist sich also der 330-Reflex als der günstigste.

Die elektronische Maximalreflektivität sollte in der Größenordnung  $5 \cdot 10^{-5}$  liegen. Dies läßt bei einer Primärintensität nach dem Vormonochromator von  $5 \cdot 10^{10}$  Photonen/s (5 GeV, 10 mA, 0,15 mrad horizontal (Spiegelgröße), 0,05 mrad vertikal (Spaltbreite)) eine maximale Zählrate von  $2 \cdot 10^6$  Photonen/s erwarten. Dies sollte zum Auffinden des Reflexes ausreichen.

Die zu erwartenden 100'' Reflexbreite sind auch in anderer Hinsicht eine entscheidende Größe. Sie geben eine obere Grenze für die zumutbare Mosaikstruktur der kristallinen Schicht bzw. der verwendeten Unterlage. Mosaikbreiten unter diesem Grenzwert beeinflussen die Reflektivitätseigenschaften nur wenig. Es sind also in diesen Grenzen keine vollkommen perfekten Einkristalle nötig.

#### E) Apparatur für Messungen am Synchrotronstrahl von DORIS

Die Reflektivitäten dünner Fe-Einkristalle wurden mit einer Apparatur gemessen, wie sie schon im Hinblick auf künftige Mößbauerexperimente am Synchrotronstrahl entwickelt wurde. Abbildung 13 gibt eine schematische Skizze dieses Aufbaus, wobei wegen der einfachen Darstellbarkeit nicht die in D) vorgeschlagene horizontale Strahlführung zugrunde gelegt wurde. Die Hauptkomponenten des Systems seien hier kurz diskutiert. Auf einem



- AS Ankopplung an das Strahlrohr
- GeM Ge-Monochromator
- EM Energiemonitor
- G<sub>1</sub> } Goniometer für
- G<sub>2</sub> } Kernbraggstreuung
- D Detektor
- MbA Maßbuantrieb
- H Gasdichte Plexiglashaube
- B Optische Bank
- G Justierbare Alu-Grundpl

Abb. 13 Meßplatz Mößbauerspektroskopie

im Boden verschraubten Gestell ist eine Grundplatte mit einer optischen Bank hoher Präzisionen auf Kugeln gelagert. Über handbetriebene Gewinde kann der folgende Aufbau horizontal und vertikal so justiert werden, daß der aus einem Be-Fenster austretende Strahl mittig in die Strahlrohrankoppelungsmuffe eintritt. Er fällt dann auf den ersten Kristall eines Doppel-Kristall-Vormonochromators. Die Reflexion an zwei 111-Ge-Kristallen erfolgt in "v"-Anordnung, so daß der Strahl parallel versetzt am Ende des Monochromators austritt. Die transmittierte Energie ist durch den Einfallswinkel des Strahls definiert, er kann mit Hilfe von Schrittmotoren extern digital variiert werden. Einzelheiten der Goniometerkonstruktion und der Steuerelektronik können /30/ entnommen werden. Messungen mit Autokollimationsfernrohren zeigen, daß ein Motorschritt den Winkel um 0,02 mrad ändert. Da eine absolute Winkeleichung schwierig ist, wird die Energieeichung an Hand der Bestimmung von Absorptionskanten durchgeführt.

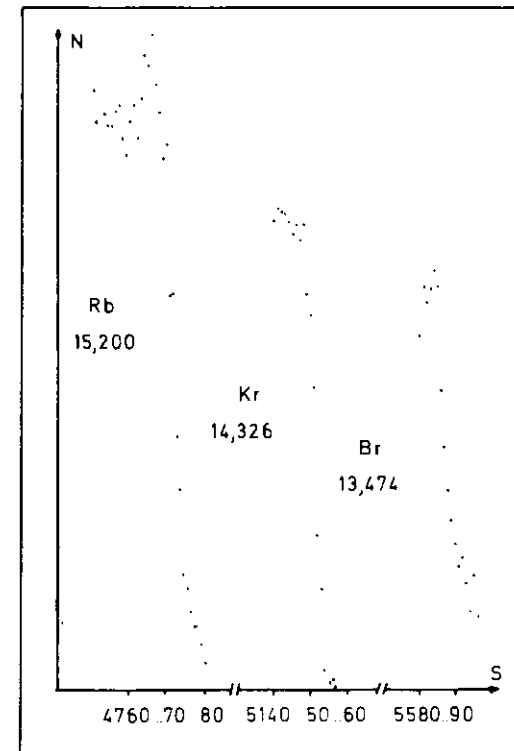


Abb. 14 Zählrate im Energiemonitor gegen Vormonochromatorschrittzahl

Rb, Kr und Br haben K-Absorptionskanten in der Nähe von 14,413 keV. Zu ihrer Messung können in einem Energiemonitor verschiedene Absorber in den Strahlengang gebracht werden, und in einem  $\gamma$ -Detektor (NaJ, Photomultiplier) können die reemittierten Quanten nachgewiesen werden. Die Zählraten speichert dann ein im MCS-Mode arbeitender Vielkanal (haben 8000), der mit der Fortschaltung des Vormonochromatorgoniometers synchronisiert ist. Sobald die in den Monitor einfallende Energie unter die K-Kante absinkt, wird die Absorption und damit die Zählrate im Detektor geringer. Abbildung 14 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung. Aus ihr gewinnt man eine Energieeichung von  $\sim 2,12$  eV/Schritt, und 14,413 keV sollten also bei der Schrittzahl  $S_{Kr} = 41$  vom Vormonochromator transmittiert werden. Im übrigen ergibt sich aus der Braggbeziehung und der oben genannten Winkelerleichung eine Energieeichung von  $\sim 2,1$  eV/Schritt.

Um auch während der Messung die Energielage kontrollieren zu können, enthält der Energiemonitor in der Regel eine mit Krypton gefüllte Gaszelle, so daß der 41-Schrittabstand von dessen K-Kante schnell überprüft werden kann. Der Gasdruck der Zelle wird so gewählt, daß die Absorption oberhalb der K-Kante einige Prozent nicht übersteigt und trotzdem ein ausreichendes Signal im Detektor nachgewiesen werden kann.

Die Goniometer, die in Abbildung 13 für Kernbraggstreuung vorgesehen sind, sind die gleichen, wie sie im Vormonochromator eingesetzt werden. Zur Messung der elektronischen Kristallreflektivitäten, die mit einem zweiten identischen  $\gamma$ -Detektor durchgeführt werden, wurde in der Regel nur das untere Goniometer benutzt. Die hier dargestellte Geometrie wurde gewählt, weil die elektronische Streuung die  $\sigma$ -Polarisation bevorzugt.

Da auch bei diesem Goniometer eine absolute Winkelerleichung nicht mit ausreichender Genauigkeit durchzuführen war, mußte in Zweifelsfällen die Zuordnung eines Reflexes auf folgende Weise geschehen: Wegen

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{\sin\theta(E_1)}{\sin\theta(E_2)}$$

läßt sich der Braggwinkel nach Messung bei zwei Energien bestimmen aus der relativen Winkeleränderung gemäß

$$\theta_B(E_1) = \arctan \frac{\sin\Delta\theta}{E_1/E_2 - \cos\Delta\theta}$$

Zur Reduzierung des Untergrundes wurden in der Praxis zusätzliche Blei-

abschirmung um Strahlrohransatz und Vormonochromator verwendet. In die letzteren war der die Eingangsdivergenz definierende Schlitz inkorporiert.

Die ganze Anordnung kann bei Bedarf unter eine gasdichte Plastikhaube gebracht werden, so daß ein Betrieb in einer He-Atmosphäre möglich ist. Dies kann zur Verringerung der Absorption und zu einer effektiven Kühlung der Kristalle genutzt werden. Bisher werden nur die Vormonochromator-kristalle vom Luftstrom eines kleinen Ventilators gekühlt, was sich als ausreichend erwies, da nach Freigabe des Strahls keine Erwärmungseffekte wie Wanderung der Peaklagen oder ähnliches festgestellt wurden.

#### F) Messungen an Fe-Ag-Glimmer Systemen

Auf frisch gespaltenem Glimmer wurde Silber aufgedampft.  $\sim 500$  Å sollten als Substrat für die folgende Eisenschicht ausreichen. Die Qualität der Kristallstruktur wurde durch Messung der Reflektivität der niedrig indizierten Reflexe (wegen des größeren Atomformfaktors haben sie größere elektronische Streufähigkeit) überprüft. Dabei war wegen der Abschattung durch die Kristallhalterung bei kleinen Braggwinkeln der 222-Reflex der Messung am einfachsten zugänglich (bei 14,4 keV  $21,83^\circ$ ).

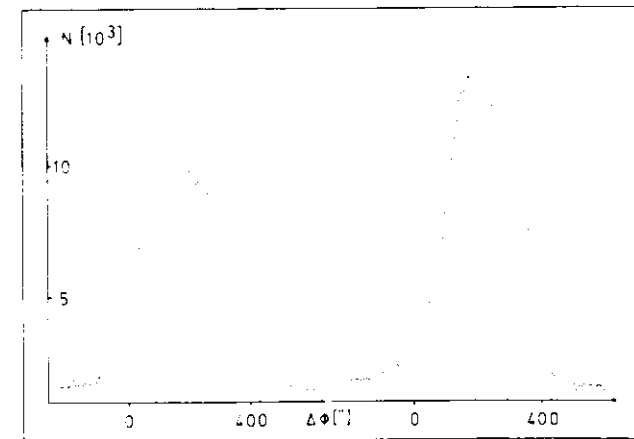


Abb. 15 222-Reflex zweier 500 Å Silberschichten, Meßzeit 0,1 s/Punkt

Abbildung 15 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen zweier typischer Aufdampfschichten. Gemäß (27) sind unter diesen Umständen Reflexbreiten um  $200''$  zu erwarten. Die gezeigten Kurven haben Breiten von  $250''$  und  $350''$ , liegen also gerade noch innerhalb der geforderten Qualitätsmargen von  $100''$  Mosaikaufweitung. Allerdings liegt die reflektierte Intensität um Größenordnungen unterhalb des erwarteten Wertes, was die Vermutung nahe legt, daß nur kleine Teile der Schicht einkristalline Struktur der gewünschten Orientierung haben.

Diese Situation bessert sich auch nicht, wie Abbildung 16 zeigt, wenn man die Dicke der Silberschicht vergrößert. Die Reflexbreite wird im Gegenteil statt kleiner größer ( $800''$ ), und die Maximalreflektivität nimmt nur begrenzt zu. Während die individuelle Reflexbreite eines Mosaikkristalls kleiner wird, haben die sich mit zunehmender Dicke der Schicht neu bildenden Kristallite eine breitere Verteilung um den idealen Braggwinkel. Es ist nicht zu erwarten, daß sich auf Substraten dieser Güte Fe-Schichten der gewünschten Qualität aufdampfen lassen.

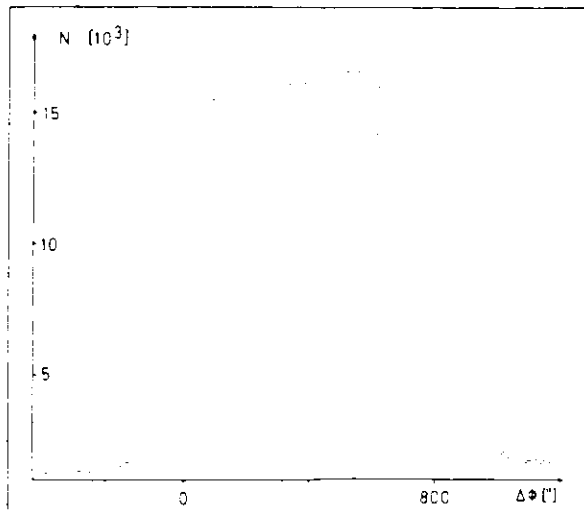


Abb. 16 222-Reflex einer 2000 Å Silberschicht, Meßzeit 0,1 s/Punkt

Die Bestätigung dieser Hypothese liefert Abbildung 17, die die Messung eines 220-Reflexes ( $25,1^\circ$  bei 14,4 keV) an einem Fe(1000 Å)-Ag(500 Å)-

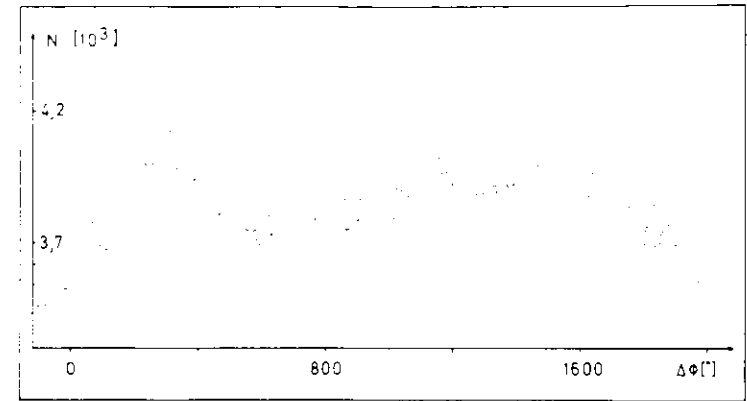


Abb. 17 220-Reflex an Fe(1000 Å)-Ag-Glimmer, Meßzeit 0,1 s/Punkt

Glimmer-System zeigt. Die Reflexionseigenschaften des Eisens reproduzieren nicht einmal die Ag-Werte, die Maximalreflektivität ist noch niedriger, die Reflexbreite liegt aufgrund von Mosaikaufweitung bei  $1600''$ .

Abbildung 18 zeigt zum Vergleich einen 110-Reflex an einem durch Sintern produzierten massiven Fe-Einkristall (hergestellt von Herrn Fenzl, Jülich). Schon mit diesem relativ einfachen Verfahren sind geringere Reflexbreiten zu erreichen als durch Epitaxie. Die Maximalintensitäten lassen sich

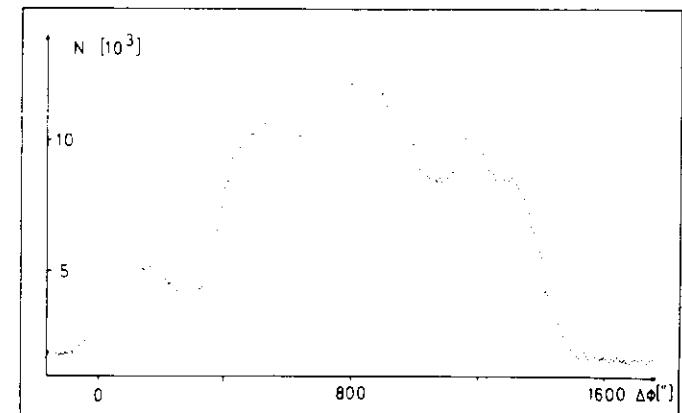


Abb. 18 110-Reflex an einem massiven gesinterten Fe-Einkristall, Meßzeit 0,1 s/Punkt

nicht direkt vergleichen, da die Kurve in Abbildung 18 einerseits mit vier Millimeter Aluminiumabschirmung vor dem Detektor aufgenommen wurde (Reduktion der Intensität um  $10^{-4}$ , um die Elektronik nicht zu überlasten) und andererseits die ausnutzbare Fläche dieses Kristalls größer war. Immerhin wird deutlich, daß die hier untersuchten epitaktischen Schichten (alle Exemplare zeigten ähnliche Eigenschaften) zum Einsatz als Mößbauermonochromatoren nicht brauchbar sind. Mosaikaufweitung und teilweise amorphes Wachstum reduzieren die Reflektivität zu stark.

Es wurde versucht, einen Doppelreflex an zwei Fe-Schichten zu realisieren, es konnte aber hinter diesem Arrangement keine reflektierte Intensität nachgewiesen werden. Zum einen sinkt die zu erwartende Intensität selbst nach zwei optimal ausgerichteten Kristallen dieser Art auf die Größenordnung des Raumuntergrundes ab, zum anderen ist zu befürchten, daß die Reflektivität weiter abgesenkt wird, da die einzelnen reflektierenden Kristallite der beiden Schichten nicht richtig zueinander stehen.

**G) Messungen an Fe-AgKristall Systemen**

Als weitere Möglichkeit zur Herstellung der benötigten Eiseneinkristalle verbleibt das epitaktische Aufdampfen von Fe-Schichten auf massive Silber-einkristalle. Die aus der Schmelze gezogenen Silberkristalle waren ca. sieben Zentimeter lang bei drei Zentimeter Durchmesser. Die gewünschte Oberfläche wurde in einem ersten Schritt mittels Spark-Cutting bei Philips, Hamburg, präpariert. Das Ergebnis einer Messung der so gewonnenen Oberfläche zeigt Abbildung 19. Nach Drehung des Kristalls um  $180^\circ$  ergab sich das gespiegelte Bild.

Das Schneiden hatte die Oberfläche bis zur Unbrauchbarkeit zerstört, schon mit bloßem Auge war eine Riefenstruktur erkennbar; die durch die Spannung beim Schneiden entstandenen Mikrokristallite zeigen in der Messung eine Vorzugsrichtung. Spannungsfreies Schneiden von Einkristallen und Polieren von Oberflächen ist mittels elektrochemischer Methoden möglich /31/, /32/. Abbildung 20 zeigt eine schematische Skizze einer zu diesem Zweck erstellten Apparatur. In einem Plexiglasgefäß ruhen Anode und Kristall in isolierendem inerten Tetrachloräthylen. Es schützt die Seiten des Kristalls vor der Elektrolyse und unterbindet durch Auffließen das weitere Abtragen der Oberfläche, sobald die gewünschte Tiefe der elektrolytischen

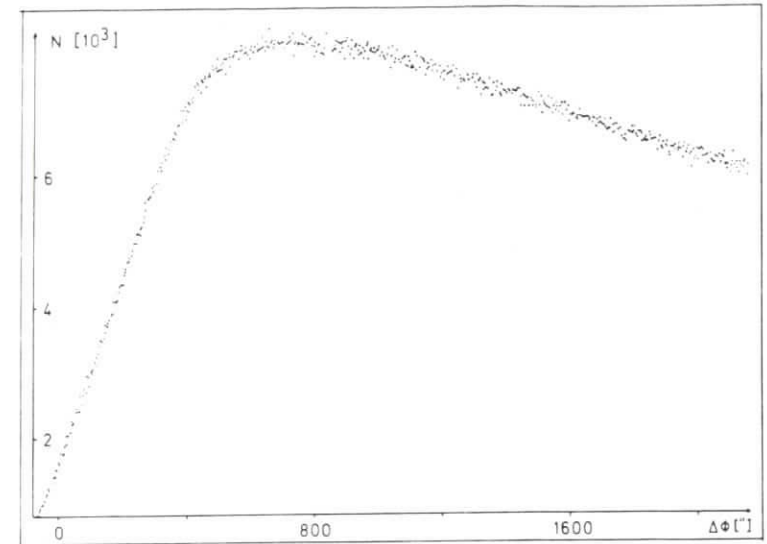


Abb. 19 222-Reflex an Silber nach Spark-Cutting, Meßzeit 0,1 s/Punkt

Abnahme erreicht ist. Die Höhe des  $C_2Cl_4$ -Spiegels wird mit einem Überlauf geregelt. Den geeigneten Elektrolyten entnimmt man der Literatur. Bei Anlegen der Gleichspannung aus einem regelbaren Netzgerät ( $\sim 2V$ ) schlägt sich das gelöste Silber an der Kathode nieder. Über einen Transformator kann eine kleine Wechselspannung eingekoppelt werden ( $\sim 1V_{eff}$ ), um Polarisationseffekte zu vermeiden.

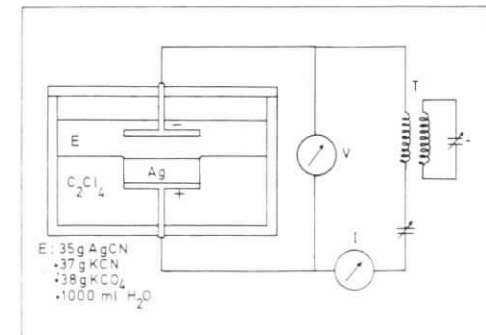


Abb. 20 Apparatur zur elektrochemischen Politur von Silberkristallen

Nach dem Polieren wurde auf den Kristallen ein dünner Niederschlag beobachtet, der auf eine gewisse Zersetzung des Elektrolyten oder Restionen des Wassers zurückgeführt werden könnte. Dieser Niederschlag konnte mit 30prozentiger  $\text{HNO}_3$  gelöst werden. Bei diesem Ätzzvorgang wurden gleichzeitig Versetzungslinien und Kleinwinkelkorngrenzen sichtbar, so daß vor einer Verbesserung des Polierverfahrens die so präparierten Kristalle erneut untersucht wurden. Sie zeigten große Mosaikbreiten ( $\geq 400''$ ), Mehrfachreflexe und unterschiedliche Reflexformen, je nach auf der Kristalloberfläche ausgeleuchtetem Gebiet. Abbildung 21 zeigt eine typische Messung an einem 800-Reflex. Die Situation änderte sich auch nach elektrolytischer Abnahme einer Schicht von einigen Millimetern Dicke nicht. Da die durch den Schneidvorgang hervorgerufenen Kristallfehler nicht bis in diese Tiefe reichen, muß angenommen werden, daß die unzureichende Qualität in Schwierigkeiten bei der Produktion derartig großer Kristalle begründet ist.

Versuchsweise wurden die polierten und geätzten Kristalle mit Eisen bedampft, es konnten jedoch keine Eisenreflexe beobachtet werden, was auf ein amorphes Wachstum der Schichten schließen läßt. Es konnte dabei nicht entschieden werden, ob dies ausschließlich auf die mangelnde Qualität der Unterlage zurückzuführen ist oder ob auch eine Restkontamination der

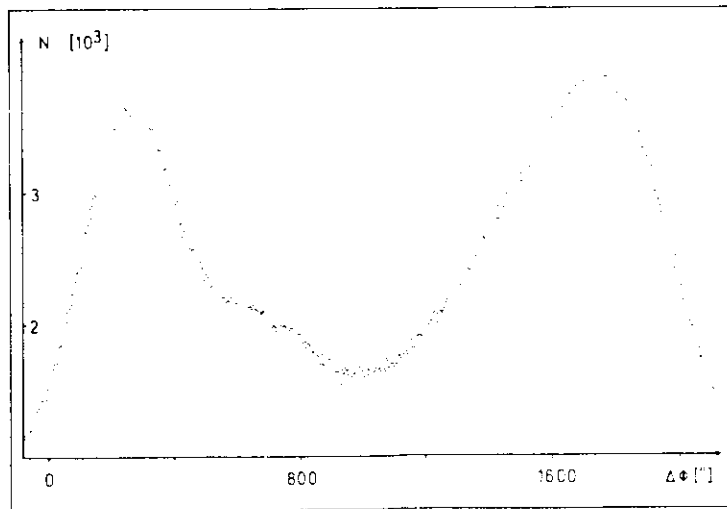


Abb. 21 800-Reflex an Silber nach elektrolytischem Polieren, Meßzeit 0,1 s/Punkt

Kristalloberfläche aus dem Elektrolysevorgang ein epitaktisches Wachstum verhindert.

Da aber die Eigenschaften der vorhandenen Substrateinkristalle die epitaktischen Fe-Schichten in ihrer Qualität derart beschränken, daß sie als Müßbauermonochromatoren nicht einsetzbar wären, wurde das Hauptaugenmerk auf die Untersuchung der Reflexionseigenschaften dünner Schichten bei streifendem Einfall gerichtet, da hier keine einkristallinen Strukturen nötig sind.

V. Vergütete Spiegel für streifenden Einfall

In Abschnitt IV wurde die Dynamische Theorie für die Braggstreuung an Kristallen entwickelt, die Mößbauerkerne enthalten. Diese Theorie war notwendig, da die Wellenlänge der Strahlung in der Größenordnung der Gitterkonstanten (1 - 10 Å) liegt. Dementsprechend ist die Strahlung sensitiv für die Feinstruktur des streuenden Mediums, und die kohärenten Beiträge der einzelnen Streuer müssen phasengerecht überlagert werden.

Eine Ausnahme zu dieser allgemeinen Situation bilden Reflexionen bei streifendem Einfall. Bei ausreichend kleinem Einfallswinkel wird die Streuamplitude in 1. Näherung vom Winkel unabhängig, und es kann sowohl für den durchgehenden als auch für den gestreuten Strahl Vorwärtsstreuung angenommen werden. Dementsprechend ist die Gleichphasigkeit in den beiden Kanälen gewährleistet. Dies ist der große Vorteil dieser Streugeometrie, denn die Streuung wird so von der Anordnung der Streuzentren unabhängig; es sind also keine Einkristalle mehr nötig.

Der Einfluß des Mediums kann in diesem Fall durch seinen Brechungsindex beschrieben werden, der in der üblichen Weise von der Streulänge abhängt:

$$\tilde{n} = 1 + \frac{2\pi}{k_0^2} \rho \tilde{f}(\vec{k}_0, \vec{e}, \vec{k}_0, \vec{e}) \approx 1 + \frac{2\pi}{k_0^2} \rho \tilde{f}^0$$

Dies reduziert die Behandlung der Reflexion an ebenen Medien auf die Streuung an den Grenzflächen der Gebiete unterschiedlichen Brechungsindex. Die Behandlung der Randbedingungen wird hier einfacher als in dem in IV entwickelten Formalismus, obwohl sie natürlich auch dort möglich ist /24/. Besonders einfach wird dies, wenn  $\tilde{n}$  durch eine bestimmte Wahl von orthogonalen Polarisationsvektoren diagonalisiert werden kann.  $\tilde{n}$  läßt sich in diesem hier behandelten Fall für die einzelnen Polarisationen als Skalar auffassen.

A) Reflexion Vakuum - Medium und Medium - Medium

In der gewählten Polarisationsbasis hat eine ebene Welle in einem Medium die Form:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \sum_{\lambda} A_{\lambda} \hat{e}_{\lambda} e^{i(\vec{k}_{\lambda} \vec{r} - \omega t)} \quad , \quad |\vec{k}_{\lambda}| k_{\lambda} = \frac{\omega}{c} n_{\lambda}$$

Trifft eine solche Welle auf die Grenzfläche zwischen Vakuum (n = 1) und einem Medium, so ergeben sich die in Abbildung 22 skizzierten Verhältnisse.

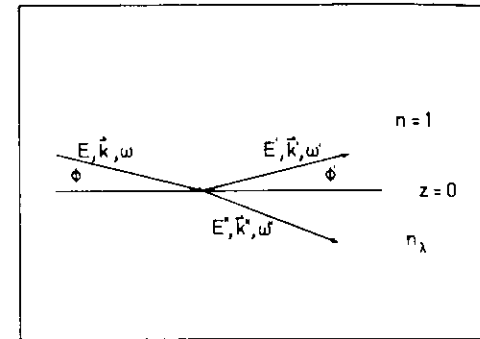


Abb. 22 Reflexion Vakuum - Medium

Die Maxwell-Gleichungen fordern dann an dieser Grenzfläche die Erfüllung verschiedener Randbedingungen, die die Stetigkeit aller Phasenfaktoren voraussetzt. Daraus erhält man:

$$\omega = \omega = \omega' \quad , \quad k_x = k_x = k_x' \quad , \quad k_y = k_y = k_y'$$

Die Reflexion findet also in einer Ebene statt, o.B.d.A.  $k_y = 0$ . Damit folgt weiter:

$$k_z = -k_z \rightarrow \phi' = \phi$$

$$k_{z\lambda} = k \sin \phi \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1) / \sin^2 \phi} \rightarrow k_{\phi} \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1) / \phi^2}$$

Die Randbedingungen an die Amplituden lauten: Die Komponenten parallel zur Grenzfläche von  $\vec{E}$  und  $\vec{H} = (\vec{k} \times \vec{E}) / \omega$  ( $\mu = 1$ ) seien stetig. Dies liefert

$$E_{\lambda} + E'_{\lambda} - E_{\lambda}'' = 0$$

$$k_{\phi} (E_{\lambda} - E'_{\lambda} - E_{\lambda}'' \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1) / \phi^2}) = 0$$

und der Reflexionskoeffizient für die die  $\lambda$ -Polarisation wird damit:

$$R_{\lambda}^{01} = \frac{E'_{\lambda}}{E_{\lambda}} = \frac{1 - \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1) / \phi^2}}{1 + \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1) / \phi^2}} \tag{28}$$



Ebenso erhält man für den Transmissionskoeffizienten:

$$T_{\lambda}^{01} = \frac{E_{\lambda}^t}{E_{\lambda}^i} = \frac{2}{1 + \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}} \quad (29)$$

Im Fall vergüteter Spiegel trifft der so präparierte Strahl auf ein zweites Medium, und nur eines der beiden enthält die Mößbauerkerne, die die Polarisationsbasis definieren. Hier sei davon ausgegangen, daß im ersten Medium  $n$  unabhängig von der Polarisation ist. Diese Situation ist in Abbildung 23 dargestellt.

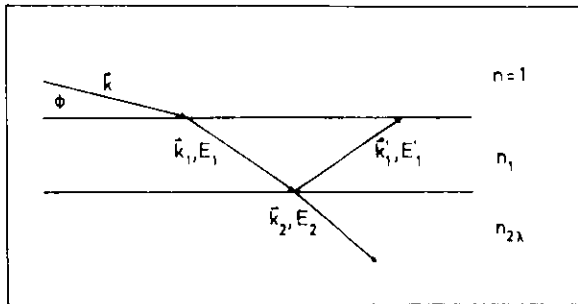


Abb. 23 Reflexion Vakuum - geschichtetes Medium

Aus der Stetigkeit der Phasenfaktoren folgt wie oben die Erhaltung der Frequenz und weiter:

$$k_{1z} = k \phi \sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} = -k'_{1z}$$

$$k_{2z} = k \phi \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}$$

Damit ergibt sich nun aus der Stetigkeit von  $E_{\parallel}$  und  $H_{\parallel}$

$$E_{1\lambda} + E'_{1\lambda} - E_{2\lambda} = 0$$

$$\sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} (E_{1\lambda} - E'_{1\lambda}) - \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2} E_{2\lambda} = 0$$

und Reflexions- und Transmissionskoeffizient werden nun:

$$R_{\lambda}^{12} = \frac{\sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} - \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}}{\sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} + \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}} \quad (30)$$

$$T_{\lambda}^{12} = \frac{2 \sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2}}{\sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} + \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}} \quad (31)$$

Vertauschung der Brechungsindizes liefert sofort:

$$R_{\lambda}^{21} = -R_{\lambda}^{12}, \quad T_{\lambda}^{21} = \frac{2 \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}}{\sqrt{1 + (n_1^2 - 1)/\phi^2} + \sqrt{1 + (n_{2\lambda}^2 - 1)/\phi^2}} \quad (32)$$

Die entsprechenden Ausdrücke für den Übergang Vakuum - Medium erhält man offensichtlich mittels der Ersetzung  $n_1 = 1$  und  $n_{2\lambda} = n_{\lambda}$ . Demzufolge ist dort:

$$T_{\lambda}^{10} = \frac{2 \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1)/\phi^2}}{1 + \sqrt{1 + (n_{\lambda}^2 - 1)/\phi^2}} \quad (33)$$

Die gesamte reflektierte Amplitude bei Streuung an einem System geschichteter Medien ergibt sich aus der phasengerechten Addition der Beiträge von Streuungen an den einzelnen Grenzflächen. Die Rechnung sei für einen einfach vergüteten Spiegel, siehe Abbildung 24, angegeben.

Die allgemeine Form für mehrfach vergütete Spiegel erhält man mittels der Substitution von  $R^{12}$  durch den Reflexionskoeffizienten des gesamten folgenden Systems.

(Im folgenden ist der Polarisationsindex weggelassen.)

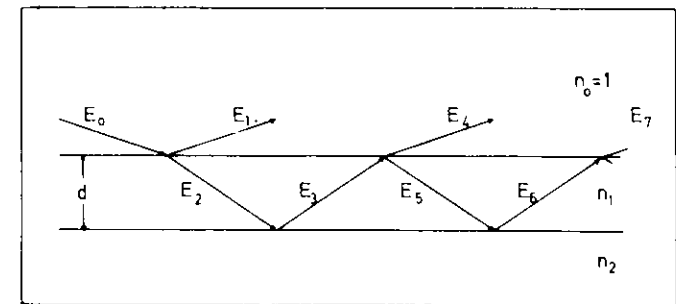


Abb. 24 Amplitudenverhältnisse bei Reflexion an einer einfach vergüteten Oberfläche

Wählt man als Bezugspunkt für die Phasendifferenzen die erste Grenzfläche, so ergeben sich die Feldamplituden zu:

$$\begin{aligned}
 E_1 &: R^{01} E_0 \\
 E_2 &: T^{01} E_0 \\
 E_3 &: R^{12} T^{01} E_0 e^{i2k_2 d} \\
 E_4 &: T^{10} R^{12} T^{01} E_0 e^{i2k_2 d} \\
 E_5 &: R^{10} R^{12} T^{01} E_0 e^{i2k_2 d} \\
 E_6 &: R^{12} R^{10} R^{12} T^{01} E_0 e^{i4k_2 d} \\
 E_7 &: T^{10} R^{12} R^{10} R^{12} T^{01} E_0 e^{i4k_2 d} \\
 &\vdots
 \end{aligned}$$

also

$$\begin{aligned}
 E_r &= \sum_n E_{1,3,5,7} \\
 &= E_0 (R^{01} + T^{10} R^{12} T^{01} e^{i2k_2 d} + \dots) \\
 &= E_0 (R^{01} + T^{10} R^{12} T^{01} e^{i2k_2 d} (1 - R^{10} R^{12} e^{i2k_2 d})^{-1})
 \end{aligned}$$

Aus (28), (29) und (33) folgt

$$T^{01} T^{10} - R^{01} R^{10}$$

und damit wird der gesamte Reflexionskoeffizient:

$$R = \frac{R^{01} R^{12} e^{ik\phi} \sqrt{1 + (n^2 - 1)/\phi^2} d}{1 + R^{01} R^{12} e^{ik\phi} \sqrt{1 + (n^2 - 1)/\phi^2} d} \quad (34)$$

### B) Vergütung

Zur leichteren Interpretation der Formeln für die Reflexionskoeffizienten führt man diese auf Größen zurück, die prinzipiell der Messung leicht zugänglich sind. In den Wurzeln kann man setzen:

$$(n^2 - 1)/\phi^2 = (1 + 4\pi/k^2 \rho \tilde{f}^0 + (2\pi/k^2 \rho \tilde{f}^0)^2 - 1)/\phi^2 \approx \frac{\lambda^2 \rho}{\pi \phi^2} \tilde{f}^0$$

Die Vorwärtsstreuamplitude besteht aus einem elektronischen und einem nuklearen Teil, der energieabhängig ist. Sei zuerst der Fall betrachtet, daß die Energie keine Kernresonanz anregen kann; dann reduziert sich die Streuamplitude auf einen elektronischen Teil, der gegeben ist durch:

$$f_{el}^0 = -(z + \Delta f) r_0 + ik/(4\pi) \sigma_{ph}$$

(z: Zahl der Atomelektronen,  $\Delta f$ : anomaler Streufaktor, nur nahe bei Absorptionskanten erheblich)

Dann läßt sich für die Wurzeln schreiben:

$$\begin{aligned}
 \sqrt{1 + (n^2 - 1)/\phi^2} &= \sqrt{1 - \frac{\lambda^2 \rho r_0 (z + \Delta f)}{\pi \phi^2} + i \frac{\rho \sigma_{ph}}{k \phi^2}} \\
 &\approx \sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi^2} + \frac{i}{k \phi^2} \frac{1}{\text{abs}}}
 \end{aligned}$$

Die so definierte Absorptionslänge  $l_{\text{abs}}$  bestimmt die Eindringtiefe der Welle in das Medium, denn die Intensität nimmt gemäß

$$e^{-2k \text{Im} \sqrt{\phi^2 - \phi_c^2 + i/(k l_{\text{abs}})}} l$$

ab. Die Eindringtiefe ist demnach:

$$l_L \approx (2k \text{Im} \sqrt{\phi^2 - \phi_c^2 + i/(k l_{\text{abs}})})^{-1}$$

Für die weiteren Betrachtungen werde die Absorption vorläufig vernachlässigt, eine prinzipielle obere Grenze für diese Betrachtungsweise ist natürlich schon dadurch gegeben, daß die Absorption im ersten Medium nicht so groß sein darf, daß die Welle das zweite Medium gar nicht mehr erreicht. Die Rolle von  $\phi_c$  läßt sich dann leicht von der Reflektivität  $|R^{01}|^2$  ablesen:

$$\begin{aligned}
 \phi > \phi_c &: |R^{01}|^2 = \left| \frac{1 - \sqrt{1 - \phi_c^2/\phi^2}}{1 + \sqrt{1 - \phi_c^2/\phi^2}} \right|^2 < 1 \\
 \phi = \phi_c &: |R^{01}|^2 = 1 \\
 \phi < \phi_c &: |R^{01}|^2 = \left| \frac{1 - i \sqrt{\phi_c^2/\phi^2 - 1}}{1 + i \sqrt{\phi_c^2/\phi^2 - 1}} \right|^2 = 1
 \end{aligned}$$

$\phi_c$  ist also der Grenzwinkel, bis zu dem Totalreflexion stattfindet. Abbildung 25 zeigt das Verhalten der Reflektivität für Eisen ( $\psi_c$ ) mit und ohne Photoabsorption. Der kritische Winkel liegt bei 3,84 mrad.

Sei  $\phi_c$  der kritische Winkel des ersten und  $\psi_c$  derjenige des zweiten Mediums, dann lauten mit der Abkürzung

$$g(\phi) = k \phi \sqrt{1 - \phi_c^2/\phi^2}$$

die Reflexionskoeffizienten gemäß (28), (30) und (34)

$$R^{01} = \frac{1 - \sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi_0^2}}}{1 + \sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi_0^2}}}$$

$$R^{12} = \frac{\sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi_0^2}} - \sqrt{1 - \frac{\psi_c^2}{\phi_0^2}}}{\sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi_0^2}} + \sqrt{1 - \frac{\psi_c^2}{\phi_0^2}}}$$

$$R = \frac{R^{01} \cdot R^{12} e^{i2gd}}{1 + R^{01} R^{12} e^{i2gd}}$$

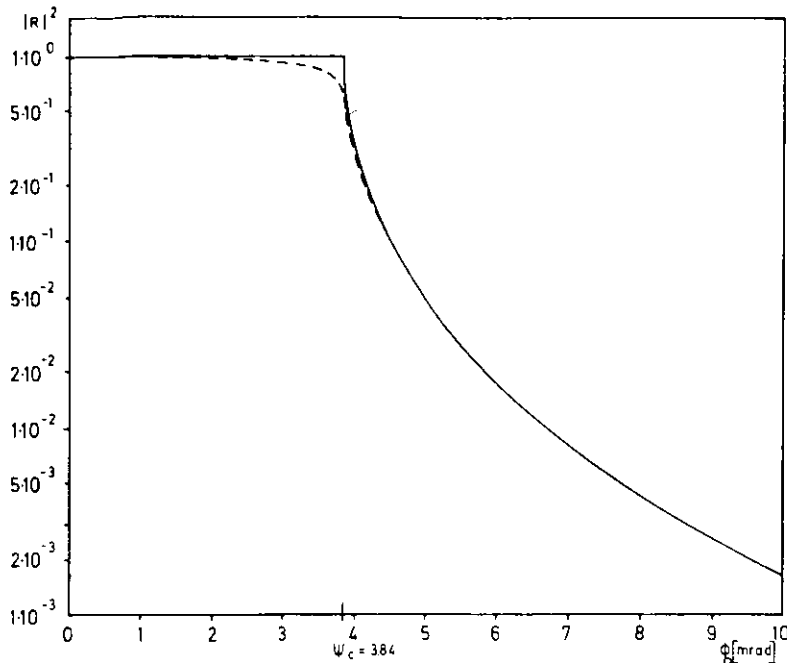


Abb. 25 Reflektivität eines Eisenspiegels, durchgezogene Linie: ohne Photoabsorption

Als  $\lambda/4$ -Vergütung bezeichnet man eine Wahl der Größen  $\phi_c$ ,  $\psi_c$  und  $d$  derart, daß ein Winkel  $\phi_0$  gefunden werden kann, für den  $R^{01} = R^{12}$  wird und der Phasenfaktor gleich  $-1$ . Dann ist nämlich  $|R|^2 = 0$ , und der so vergütete Spiegel reflektiert unter diesem Winkel nicht. Für senkrechten Einfall würde dies in 1. Ordnung zu einer Dicke  $d_1 = \lambda/4$  führen, was für Wellenlängen im Angström-Bereich nicht realisierbar ist. Für streifenden Einfall lautet die entsprechende Bedingung

$$2g(\phi_0)d_n = \pi(2n-1) \quad n=1 \dots \infty$$

$$\Rightarrow d_n = \pi/2 \frac{2n-1}{k \sqrt{\phi_0^2 - \phi_c^2}}$$

und dank der Wurzel liefern schon die ersten Ordnungen akzeptable Dicken.  $\phi_0$  bestimmt sich aus:

$$R^{01}(\phi_0) = R^{12}(\phi_0)$$

$$\Rightarrow \phi_0 = \phi_c / \sqrt{2 \phi_c^2 - \psi_c^2}$$

$$\Rightarrow d_n = (2n-1) \frac{\lambda}{4} \frac{\sqrt{2 \phi_c^2 - \psi_c^2}}{\phi_c^2 (\psi_c^2 - \phi_c^2)}$$
(35)

Die kritischen Winkel müssen demnach so gewählt werden, daß

$$\psi_c \geq \phi_c \geq \psi_c / \sqrt{2}$$

erfüllt ist. Bei einer gewählten Dicke  $d_n$  erfüllen auch Winkel

$$\phi_m = \sqrt{\phi_c^2 + (2m+1)^2 (\phi_c^2 - \phi_0^2)}$$

die Anforderung an den Phasenfaktor, bei ihnen treten dann von null verschiedene Minima

$$|R(\phi_m)|^2 = \left| \frac{R^{01}(\phi_m) - R^{12}(\phi_m)}{1 - R^{01}(\phi_m) R^{12}(\phi_m)} \right|^2 \neq 0$$

höherer Ordnung auf.

Auch für Dicken  $d$ , die (35) nicht exakt erfüllen, lassen sich Winkel in der Nähe der  $\phi_m$  finden, bei denen sich von null verschiedene Minima der Reflektivität bilden. Bei diesen Winkeln kompensiert die Winkelabweichung gerade die Dickenabweichung. Allerdings zeigt die Betrachtung der Verhältnisse für  $\phi_c \leq \phi \leq \psi_c$

$$R^{12} = \frac{\sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi^2}} - i \sqrt{\frac{\psi_c^2}{\phi^2} - 1}}{\sqrt{1 - \frac{\phi_c^2}{\phi^2}} + i \sqrt{\frac{\psi_c^2}{\phi^2} - 1}} = e^{i\eta}$$

$$\Rightarrow R = e^{-i(2gd+\eta)} \frac{R^{01} + e^{i(2gd+\eta)}}{R^{01} + e^{-i(2gd+\eta)}}$$

$$\Rightarrow |R|^2 = 1$$

und für

$$\phi \leq \phi_c \leq \psi_c$$

$$R^{01} = \frac{1 - i \sqrt{\frac{\phi_c^2}{\phi^2} - 1}}{1 + i \sqrt{\frac{\phi_c^2}{\phi^2} - 1}} = e^{i\delta}$$

$$g = ki \sqrt{\phi_c^2 - \phi^2} = ig'$$

$$\Rightarrow R = \frac{1 + R^{12} e^{-2gd} - i\delta}{1 + R^{12} e^{-2gd} + i\delta} e^{i\delta}$$

$$\Rightarrow |R|^2 = 1$$

daß Minima nur oberhalb von  $\Psi_c$  möglich sind.

Die Berücksichtigung der Photoabsorption in den Medien ändert für den Fall oberhalb von  $\Psi_c$  die Situation nicht prinzipiell. Die Gleichheit der Reflexionskoeffizienten läßt sich nun jedoch, wegen der auftretenden Imaginärteile, nicht mehr exakt erfüllen, da nicht sowohl die kritischen Winkel als auch die Absorptionslängen frei wählbar sind. Die Imaginärteile sind aber klein, und Übereinstimmung in den Realteilen fordert

$$1 - \Phi_c^2 / \Phi_0^2 = \text{Re} \sqrt{1 - \Psi_c^2 / \Phi_0^2 + \frac{i}{k \Phi_0^2 \lambda_{\text{abs}}}} \quad (36)$$

Die Absorptionslängen müßten eigentlich gleichzeitig erfüllen:

$$\frac{1}{k \Phi_0^2 \lambda_{\text{abs}}} = \text{Im} \sqrt{1 - \Psi_c^2 / \Phi_0^2 + \frac{i}{k \Phi_0^2 \lambda_{\text{abs}}}}$$

Dies ist in der Regel nicht möglich, liefert jedoch ein Auswahlkriterium für besonders gut geeignete Vergütungsmaterialien. Auch die  $\lambda/4$ -Bedingung ist nicht mehr exakt erfüllbar, sie ist vielmehr zu ersetzen durch:

$$e^{i2g(\Phi_0)d_n} = -e^{-2\text{Im}g(\Phi_0)d_n}$$

$$\Rightarrow d_n = \frac{\lambda}{4} \frac{2n-1}{\text{Re} \sqrt{\Phi_0^2 - \Phi_c^2 + i/k \lambda_{\text{abs}}}}$$

Auf die analytische Bestimmung von  $\Phi_0$  sei hier verzichtet, es bestimmt sich besser numerisch. Die unter Vernachlässigung der Absorption gewonnenen Ausdrücke können dabei als nützliche Hinweise auf die zu untersuchenden Wertebereiche dienen. Es zeigt sich, daß nun auch für  $\Phi < \Psi_c$  Minima möglich sind. In diesem Fall ist

$$\text{Re} R^{12}(\Phi) = -1$$

und die Anpassung der Terme im Zähler von R wird durch

$$e^{-2\text{Im}g(\Phi)d} < 1$$

gewährleistet. Abbildung 26 zeigt eine Darstellung der Reflektivitäten für verschiedene Dicken der Vergütung (Ge auf Fe). Bei  $d=0$  ist  $R^{01} = 0$  und damit  $R = R^{12}$ . Mit zunehmender Dicke wandert das Minimum 1. Ordnung zu kleineren Winkeln, bis es bei  $\Phi_0 = \Psi_c$  kaum noch ausgeprägt ist. Bei weiter wachsenden Dicken wandert das Minimum weiter zu kleineren Winkeln, und die nächste Ordnung wird im abgebildeten Bereich sichtbar, bis schließlich die vergütende Schicht so dick wird, daß der Phasenfaktor auf

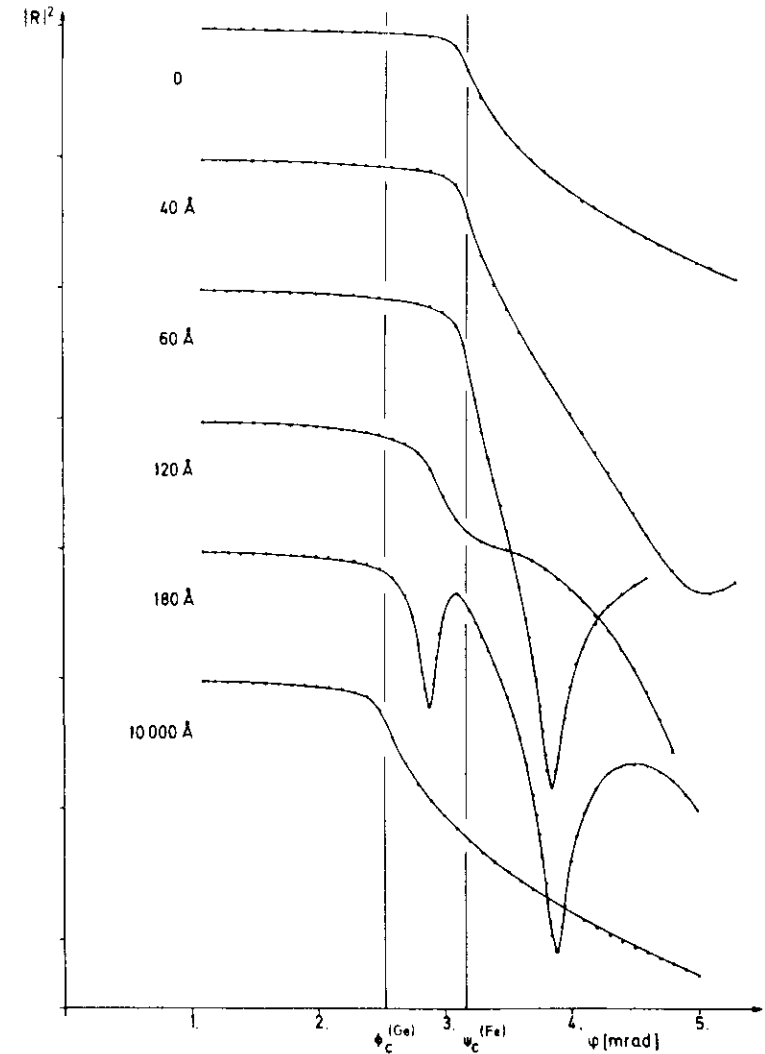


Abb. 26 Reflektivität eines mit Germanium vergüteten Eisenspiegels für verschiedene Dicken der Vergütung

Grund der Absorption so weit gedämpft wird, daß nur noch das Germanium die Reflektivität bestimmt.

C) Qualität der Unterdrückung für ideale Spiegel

Im folgenden sei als Spiegelmaterial wiederum, wegen seiner guten Kernstreuereigenschaften, Eisen zugrunde gelegt. Aus (36) folgt für die optimale Elektronendichte in Abhängigkeit vom Minimumswinkel:

$$\rho_e^1(\Phi) = \frac{\pi}{\lambda^2} \Phi_0^2 (1 - Re) \left[ 1 - \frac{\lambda^2 \rho_{ph}^{Fe}}{r_0 \pi \Phi_0^2} + \frac{\rho \sigma^{Fe}}{k \Phi_0^2} \right]$$

Abbildung 27 zeigt diese Beziehung mit und ohne Absorption.

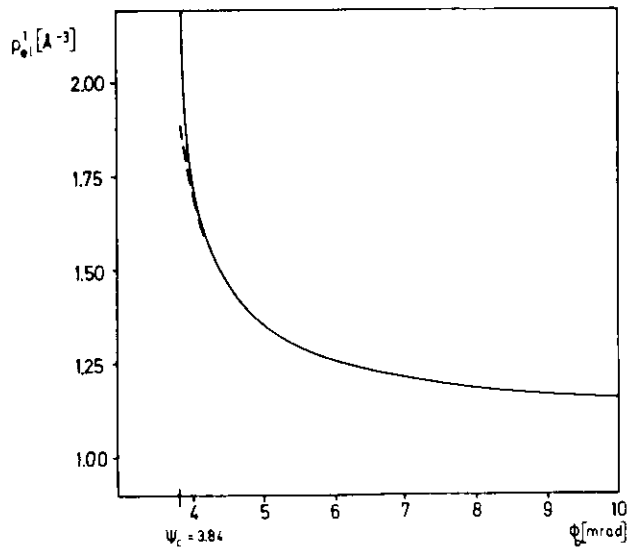


Abb. 27 Nötige Elektronendichte zur Vergütung bei  $\Phi_0$  für Eisenspiegel

Es wurden für einige einfache Materialien mit entsprechenden Elektronendichten die Reflektivitäten für verschiedene Dicken der Vergütung durchgerechnet. (Die Daten der Elektronendichten wurden aus /33/, die der anomalen Streufaktoren aus /14/ entnommen. Die Photoabsorptionswirkungsquerschnitte wurden nach /15/ berechnet.)

In Abbildung 28 ist das Ergebnis für eine Tellurvergütung dargestellt. Es gibt eine optimale Dicke, für die beim Minimumswinkel die Reflektivität am geringsten wird. Die Minimalreflektivität wird schon bei kleinen Abweichungen von dieser Dicke schnell größer.

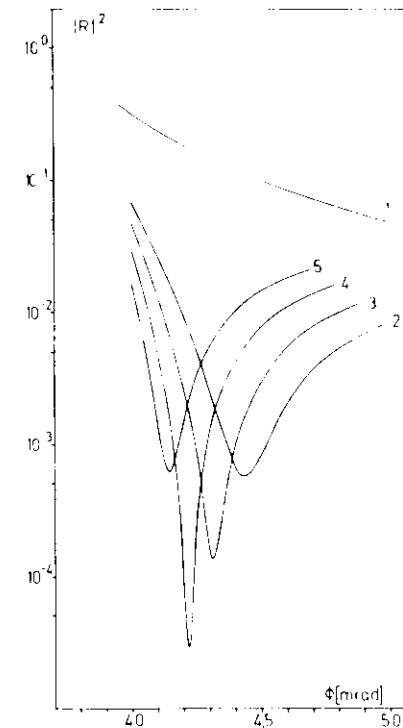


Abb. 28 Reflektivität eines Eisenspiegels mit Tellurvergütung der Dicke d: 1) d = 0 Å, 2) d = 70 Å, 3) d = 75 Å, 4) d = 80 Å, 5) d = 85 Å

In Tabelle 4 sind die optimalen Parameter im Bereich der untersuchten Elemente zusammengestellt. Außerdem sind aufgeführt die Minimalreflektivität und deren Verhältnis zur Reflektivität unvergüteten Eisens. Zum Vergleich sind hinzugefügt die Parameter, wie sie sich aus den Näherungsausdrücken ohne Absorption ergeben.

Die hier diskutierten Reflektivitäten gelten für ideale Bedingungen, wie sie im Experiment sicher nicht hundertprozentig erfüllt sind. In vier Hauptpunkten sind Abweichungen von den Voraussetzungen des theoretischen Ansatzes wahrscheinlich:

- i) Es gibt keine ideal ebenen Oberflächen. Spiegel werden in Güteklassen

	$\Phi_0$ [mrad]	$d$ [Å]	$r_m$	$r_{Fe}/r_m$	$\Phi_t$ [mrad]	$d_t$ [Å]
Ti	5,96	42	1,657 (-7)	1,03 (5)	6,30	38,4
Se	5,86	41	8,899 (-8)	2,08 (5)	6,26	38,7
Ge	4,43	67	1,626 (-7)	6,07 (5)	4,68	60,9
Te	4,23	79	6,065 (-7)	2,31 (5)	4,31	74,4
Ga	4,04	92	6,568 (-7)	3,24 (5)	4,21	80,3
V	4,05	98	1,319 (-5)	1,58 (4)	4,14	85,2
Sb	3,99	104	8,120 (-6)	2,88 (4)	4,05	95,2
Ce	3,93	111	2,335 (-5)	1,19 (4)	4,04	96,6
Zr	4,02	105	6,487 (-6)	3,42 (4)	4,02	99,6

Tab. 4 Optimale Vergütungsparameter; Notation:  $x(y) = x \cdot 10^y$

von  $\lambda/5$  und  $\lambda/50$  Oberflächengüte industriell gefertigt. Zumindest einzelne Komponenten des Schichtsystems der vergüteten Spiegel müssen durch Aufdampf- oder Sputtertechniken hergestellt werden. Diese Verfahren führen zu statistisch und oberflächenphysikalisch bedingten Rauigkeiten. Diese Variationen der Oberflächenbeschaffenheit beeinflussen die Reflektivität je nach der Größenordnung der typischen linearen Dimensionen. Sehr "langwellige" Abweichungen von der idealebenen Struktur sollten sich in einer Variation des Einfallswinkels dokumentieren und zu einer Überlagerung von Reflektivitätskurven mit verschobener Winkelskala führen. Dies hätte eine allgemeine Mittelung über die Struktur der Reflektivitätskurve zur Folge. Über sehr kurzwellige Störungen sollte die einfallende Welle mitteln. Die Art dieser Mittelung hängt sicher von der Mikrostruktur der Rauigkeit ab, es sind noch keine befriedigenden theoretischen Ansätze zur allgemeinen Behandlung dieser Phänomene bekannt. In einem mittleren Bereich der Störungsdimensionen sollten sich die Abweichungen im wesentlichen als eine Variation der Dicke der Vergütung bemerkbar machen. Um zumindest den Einfluß dieses Effekts abzuschätzen, wurden die theoretischen Rechnungen wiederholt und dabei in einem Bereich von 5 % die Dicke variiert und anschließend gemittelte Reflektivitäten berechnet. Abbildung 29 zeigt das entsprechende Ergebnis für die Tellurvergütung. Zwar wird die Unterdrückung geschwächt, aber die verbleibenden Effekte bewegen sich noch in der Größenordnung  $10^{-3}$  und sind weniger empfindlich auf die mittlere Dicke der Tellurschicht.

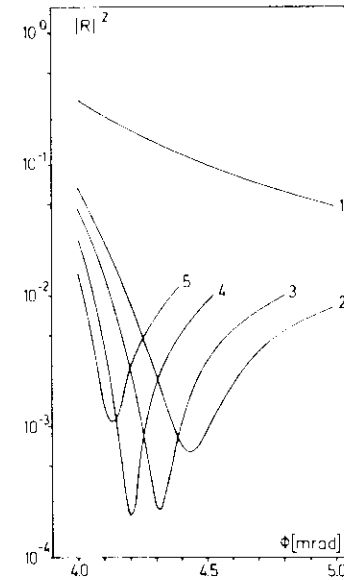


Abb. 29  
Gemittelte Reflektivität eines Eisenspiegels mit einer Tellurvergütung der mittleren Dicke  $d$ : 1)  $d = 0$  Å; 2)  $d = 70$  Å; 3)  $d = 75$  Å; 4)  $d = 80$  Å; 5)  $d = 85$  Å

ii) Im Experiment steht keine ebene monochromatische Welle zur Verfügung. Will man nicht auf zu viel Intensität des Primärstrahls verzichten, so muß man für ihn Divergenzen zulassen, die in der Größenordnung der Minimumsbreite der Reflektivität liegen können. In den folgenden Rechnungen wurde deshalb auch eine Mittelung über eine Divergenz von  $2,5 \cdot 10^{-4}$  rad (dies entspricht einer oberen Abschätzung der Divergenz der Synchrotronstrahlung von DORIS) durchgeführt. Wird außerdem die Strahlung nicht durch einen Kerzerfall erzeugt, sondern einem kontinuierlichen Spektrum entnommen (Synchrotronstrahlung, mit Einschränkungen auch Strahlung von Röntgenröhren), so wird üblicherweise ein Vormonochromator benutzt, der das Spektrum auf ca. 10 eV eingrenzt. Dies bedeutet für Eisen eine Bandbreite von 0,1 %, und diese Wellenlängenvariation ist gegenüber den bisher erwähnten Effekten unerheblich. Tabelle 5 stellt die optimalen Vergütungsparameter zusammen, wie man sie nach Dicken- und Divergenzmittelung erhält.

iii) Die Oberflächen der Spiegel können ihre Struktur ändern. Vor allem durch Oxidation, z. B. in der von intensiver Strahlung in Luft produzierten Atmosphäre, können die vergüteten Materialien neue Oberflächenschichten

	$\bar{\Phi}_0$ [mrad]	$\bar{d}$ [Å]	$\bar{r}_m$	$\bar{r}_{Fe}/\bar{r}_m$
Ti	6,02	42	2,386 ( 5)	719
Se	6,03	40	2,106 ( -5)	807
Ce	4,57	65	3,701 ( 4)	245
Te	4,38	76	9,400 ( -4)	135
Ga	4,21	85	2,676 ( 3)	68
V	4,19	93	3,530 ( 3)	54
Sb	4,15	97	5,177 ( -3)	41
Ce	4,12	98	7,237 ( 3)	32
Zr	4,17	96	4,719 ( 3)	40

Tab. 5 Gemittelte optimale Vergütungsparameter

abweichender Elektronendichte entwickeln. Dies hat zur Folge, daß die  $\lambda/4$ -Anpassung verstimmt oder völlig zerstört wird. Man kann die Spiegel deshalb vorbeugend im Vakuum oder in nichtaggressiven Atmosphären betreiben oder Materialien wählen, die nicht oder in wohldefinierten Dicken oxidieren, um diese Oxidationen dann von vornherein zu berücksichtigen. Eine Alternative bilden Materialien, deren Oxide in ihren Reflexionseigenschaften nur geringfügig abweichen. Abbildung 30 demonstriert dies wiederum am Beispiel des Tellurs.

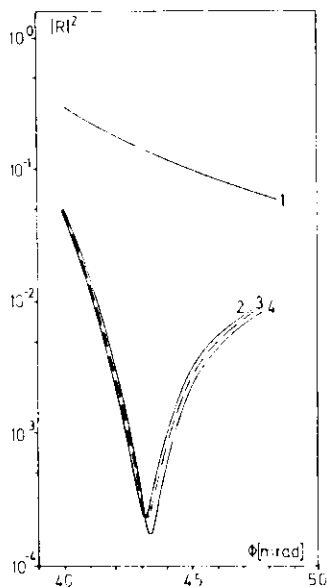


Abb. 30  
 Gemittelte Reflektivität eines Eisenspiegels mit teilweise oxidierter Tellurvergütung: 1) unvergütetes Fe, 2) Fe + 65 Å Te + 10 Å TeO<sub>2</sub> (rh), 3) Fe + 65 Å Te + 10 Å TeO<sub>2</sub> (tr); 4) Fe + 55 Å Te + 20 Å TeO<sub>2</sub> (tr)

iv) An den Oberflächen können Fremdatome adsorbiert werden. Vor allem eine Adsorption von Wasser kann selbst bei kontinuierlicher Aufbewahrung unter Hochvakuum auf die Dauer nicht vermieden werden. Diese Adsorptionsschichten haben ähnliche Auswirkungen wie die Oxidfilme, aber es läßt sich numerisch abschätzen, daß Wasserfilme bis zur Dicke von 100 Å keinen entscheidenden Einfluß auf die Unterdrückungseigenschaften nehmen.

Inwieweit allerdings im ganzen die hier vorgenommenen Abschätzungen der Störeinflüsse realistisch sind, muß das Experiment zeigen.

#### D) Apparatur zur Messung der elektronischen Reflektivität bei streifendem Einfall

Wegen der einfacheren Verfügbarkeit wurden die Untersuchungen der elektronischen Reflektivität bei streifendem Einfall mit einer Röntgenröhre durchgeführt. Es stand eine PW 2244-Feinstrukturröhre der Firma Philips zur Verfügung mit einem Anodenbrennfleck der Dimension 0,1 x 10 mm<sup>2</sup> und dessen großer Achse in horizontaler Richtung. Diese Strahlgeometrie simuliert in guter Näherung den Synchrotronstrahl, so daß die Apparatur aus IV E mit kleinen Modifikationen eingesetzt werden konnte. In zwei Hauptpunkten unterscheiden sich die Arrangements:

- i) Die Röhre emittiert in einem relativ großen Raumwinkel, so daß schon nach grober Vorjustierung immer Strahlung unter dem richtigen Braggwinkel auf den ersten Vormonochromatorkristall fällt.
- ii) Das Spektrum der Röhre ist nicht weiß, sondern hat Intensitätsmaxima bei den charakteristischen Energien des verwendeten Anodenmaterials (hier Molybdän Mo- $k_{\alpha}$ :  $\lambda = 0,709$  Å) mit Intensitäten, die um 2 bis 3 Größenordnungen über dem Bremsstrahlungsuntergrund liegen und eine energetische Breite von einigen eV haben.

Betrachtet man einen Strahl dieser Energie als Zentralstrahl, so treten benachbarte Energien über oder unter ihm parallel versetzt aus dem Vormonochromator aus. Eine effektive Energieselektion ist also durch einen schmalen Schlitz ( $h = 0,15$  mm) in entsprechender Höhe hinter dem Vormonochromator möglich. Die Justierung erfolgt einfach durch Einstellung auf maximale Intensität. Der Energiemonitor kann so entfallen.

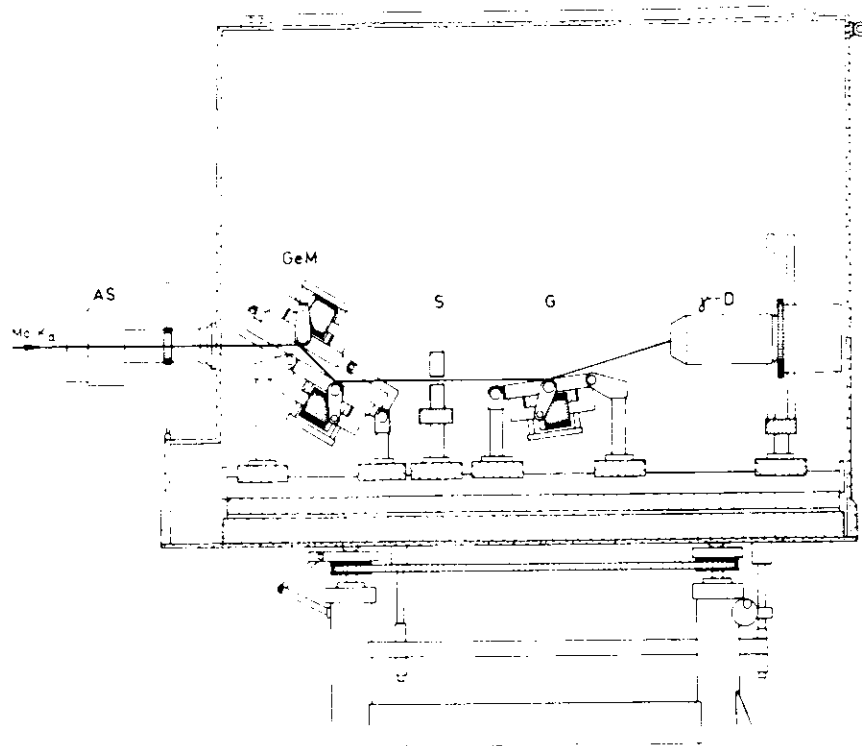


Abb. 31 Röntgenmeßplatz zur Reflektivitätsbestimmung bei streifendem Einfall

Abbildung 31 zeigt eine schematische Skizze dieses Aufbaus. Der Abstand Anode – Schlitz beträgt ca. 2 m. Die resultierende effektive Divergenz wurde zu 30" abgeschätzt (34%). Auf der optischen Bank folgt ein höhenverstellbares Goniometer, auf dem die zu untersuchende Oberfläche montiert und in die Mitte des Strahls justiert werden kann. Der direkte Strahl wird in der Bleiabschirmung des Detektors mittels eines Halbspaltes ausgeblendet. Die genaue Justierung dieser Blende bezüglich Strahl und Oberfläche legt den minimalen Winkel fest, unter dem noch reflektierte Intensität nachgewiesen werden kann, und definiert so auf  $10'' \pm 0,05$  mrad die Winkelstellung  $\theta$ .

Zur Steuerung des Schrittmotors, zur Bestimmung der Zählrate und zur Dokumentation der Ergebnisse wurde ein Mikroprozessor (Rockwell AIM 65) eingesetzt.

Die zur Messung benutzte Wellenlänge weicht um 17 % von der später interessierenden Resonanzwellenlänge des  $^{57}\text{Fe}$  von 0,86 Å ab. Dies vermeidet einerseits das Auftreten von Resonanzeffekten, andererseits bleibt die Aussagefähigkeit der Meßergebnisse erhalten, da diese Wellenlängenänderung im wesentlichen eine Stauchung der Winkelskala bedeutet.

Die Reflektivitäten hängen von  $\Phi_c^2/\Phi^2$  und  $i(k|l_{\text{abs}})^{-1}/\Phi^2$  ab.  $\Phi_c$  ist direkt proportional zur Wellenlänge, so daß sich die erste Größe nicht ändert, wenn man zu einem Winkel  $\Phi' = \Phi \lambda'/\lambda$  übergeht. Der komplexe Beitrag, der auf den Absorptionswirkungsquerschnitt zurückgeht, beeinflußt als kleine Korrektur nur in der Nähe des kritischen Winkels den Verlauf der Reflektivität. Für kleine Wellenlängenbereiche läßt sich näherungsweise ansetzen  $\sigma_{\text{ph}}(\lambda) = c\lambda^p$ ;  $p = 2,5 / 15$ , und man erhält so  $(k|l_{\text{abs}})^{-1}/\Phi^2 = (k|l_{\text{abs}})^{-1}/\Phi^2 \cdot 0,75$  für die hier betrachteten Wellenlängen. Selbst am kritischen Winkel führt dies nur zu einer Abweichung des Reflektivitätsverlaufs um 5 bis 10 %. Die Messungen mit der  $\text{Mo-k}_\alpha$  Strahlung liefern also Aufschluß über die elektronische Reflektivität auch für die  $^{57}\text{Fe}$ -Resonanzenergie, wenn man die Winkelskala um  $0,86/0,709 = 1,213$  spreizt.

#### E) Messungen an mit Germanium vergüteten Eisenspiegeln

Eisen hat fcc-Struktur, ist sehr weich und kann nur schlecht poliert werden, da Teile der Oberfläche am Polierstein haften und herausgerissen werden. Auch aus Gründen des Materialeinsatzes an  $^{57}\text{Fe}$  ist ein massiver Eisenspiegel nicht diskutabel.

Es kamen daher aufgedampfte Eisenschichten zum Einsatz, die wieder von Herrn Lilienkamp und Herrn Klews hergestellt wurden. Als Unterlagen wurden auf  $\lambda/10$  und  $\lambda/30$  plan geschliffene Glasspiegel der Firma B. Halle, Berlin, benutzt, die sich in den Ergebnissen nicht unterschieden. Die Eindringtiefe der Strahlung liegt schon für nichtresonante Streuung unter 500 Å. Daher reicht eine Schichtdicke von 500 bis 1000 Å aus. Abbildung 32 zeigt das Ergebnis einer Messung an einem derartigen Eisen-Glas-System.

Einige der Charakteristika, die auch den folgenden Messungen gemein sind, seien hier diskutiert:



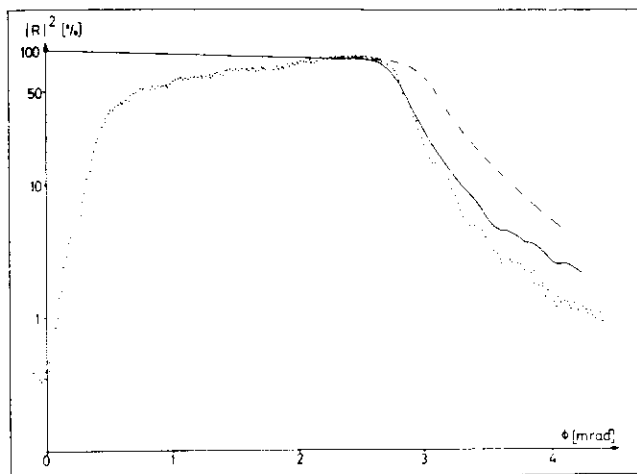


Abb. 32a Reflektivität einer 1000 Å Eisenschicht auf Glas

- i) Der steile Abfall der Reflektivität zum Winkel  $\theta$  hin wird durch den Spalt erzeugt, der den direkten Strahl abschattet. Bei sehr kleinen Winkeln beginnt dieser Spalt auch Teile der reflektierten Intensität auszublenden.
- ii) Bei einer Strahlhöhe von 0,15 mm und einem Spiegeldurchmesser von ca. 50 mm beginnt für Winkel kleiner als 3 mrad die vertikale Projektion des Spiegels kleiner zu werden als die Strahlhöhe. Es wird also ein immer kleinerer Teil der Primärintensität nutzbar. Der genaue Verlauf dieser Abschwächung mit abnehmendem Winkel hängt empfindlich von der exakt mittigen Justierung des Spiegeldrehpunktes in der Strahlmitte ab, die nicht immer völlig gegeben war. Eine detaillierte Analyse des Kurvenverlaufs in diesem Winkelbereich wurde deshalb nicht unternommen.
- iii) Man stellt fest, daß die Reflektivität schon unterhalb des theoretischen kritischen Winkels  $\psi_c$  ( $\lambda = 0,709 \text{ \AA}$ ) = 3,16 mrad stark abfällt.  $\psi_c$  und damit der Wert der Elektronendichte scheint geringer zu sein, als gemäß der Theorie erwartet. /35/ haben mit Resonanzabsorptionsmessungen die Hyperfeinparameter aufgedampfter Eisenschichten bestimmt. Sie liefern Information über die chemische Umgebung der Resonanzkerne, und es konnten Einschlüsse von Kohlenstoff nachgewiesen werden, die zu einer Verringerung der Elektronendichte führen. Aus diesem Grund wurden auch hier Möß-

bauerabsorptionsspektren des verdampften Materials aufgenommen, die aber im Rahmen der beschränkten Empfindlichkeit dieses Verfahrens (es werden Volumeneffekte nachgewiesen, während bei der Reflexion nur dünne Oberflächenschichten von Bedeutung sind) mit denen des elementaren Eisens übereinstimmen. Immerhin können größere Verunreinigungen ausgeschlossen werden, und die verringerte Elektronendichte scheint eine Folge der Mittelung des einfallenden Strahls über die Oberflächenmikrostruktur zu sein. Der Effekt ließ sich auch durch Aufdampfen bei höheren oder niedrigeren Substrattemperaturen oder anschließendes Sintern nicht verringern.

iv) Die sich auf der abfallenden Flanke bei größeren Winkeln ausbildenden periodischen Intensitätsschwankungen sind Folge der Interferenz der an der Eisen- und an der Glasoberfläche reflektierten Strahlung. Aus der Winkelperiodizität läßt sich die aktuelle Dicke der Eisenschicht bestimmen.

Zur genauen Bestimmung der Elektronendichte und der Dicke wurde eine Anpassungsrechnung durchgeführt, in der das Atomvolumen und die Schichtdicke variiert wurden. Das Ergebnis der bestmöglichen Anpassung für  $\Phi > 2,5$  mrad zeigt die durchgezogene Kurve. Sie liefert eine Dicke von 1000 Å und einen kritischen Winkel von  $\psi_c = 2,85$  mrad; die Abweichung vom theoretischen Wert beträgt also 0,3 mrad und liegt damit deutlich über der Nullpunktunsicherheit von 0,05 mrad. Die strichpunktierte Linie zeigt den Kurvenverlauf für eine hypothetische Eisenschicht natürlicher Dichte.

Abbildung 32a zeigt außerdem, daß für größere Winkel die Reflektivitäten hinter den erwarteten Werten zurückbleiben. Dieses Phänomen wurde von verschiedenen Autoren (/36/, /37/) bei analogen Messungen beobachtet und wird meist als Rauigkeitseffekt interpretiert. Es zeigt sich, daß eine bessere Übereinstimmung von Theorie und Experiment erreicht werden kann, wenn man einen Faktor der Form  $\exp(-f(\Phi))$  einführt, der die Reflektivität dämpft. Ausgehend von der Hypothese, daß die Rauigkeit in erster Linie zu Phasenabweichungen der Strahlen, die an verschiedenen Punkten der Oberfläche reflektiert werden, führt, leitet /38/ für  $f(\Phi)$  ab:  $f(\Phi) = (\sigma 4\pi\Phi/\lambda)^2$ .  $\sigma$  ist ein Maß für die mittlere Rauigkeit. Als Grenzbedingung ist hier zu fordern  $(\sigma\Phi)/\lambda \ll 1$ . Bei Einfallswinkeln nahe 0 hat die Oberflächenrauigkeit in dieser Näherung keinen Einfluß auf die Reflektivität. /37/ haben aber auch dort eine Abnahme der Reflektivität beobachtet, die sie ebenfalls der Rauigkeit zuschreiben. Dies ist in Übereinstimmung mit

der Vorstellung, daß, selbst wenn die theoretische Beschreibung einen reinen Oberflächeneffekt analysiert, der Reflexionsvorgang, je nach Eindringtiefe, ein gewisses Volumen des Mediums einbezieht. Wegen der geringen Eindringtiefe bei kleinen Winkeln bildet gerade dort das Volumen, das von der Rauhmigkeit ausgefüllt wird, einen großen Teil des aktiven Reflexionsvolumens und sollte auch dort die Reflektivität beeinflussen. /37/ schreiben den dämpfenden Einfluß bei größeren Winkeln einem Volumeneffekt zu und machen deshalb einen Ansatz mit Proportionalität zur Eindringtiefe. Auch damit erreichen sie oberhalb des kritischen Winkels gute Übereinstimmung. Die Proportionalitätskonstante kann hier nicht mehr in einfacher Weise als Rauhmigkeitsmaß interpretiert werden. Sie weist vielmehr bei Messungen mit verschiedener Energie eine lineare Abhängigkeit vom Absorptionswirkungsquerschnitt auf.

Vor diesem Hintergrund kann hier nur festgestellt werden, daß auch bei der vorliegenden Messung die Übereinstimmung von Theorie und Experiment durch eine zusätzliche dämpfende  $e$ -Funktion verbessert wird, ohne eine detaillierte Interpretation der dem zugrunde liegenden Ursachen geben zu können. Im übrigen sind die Abweichungen im interessierenden Winkelbereich zwischen 3 und 4 mrad nicht übermäßig ausgeprägt (20 - 30 %).

Abbildung 32 b bis 32 f zeigen die Ergebnisse von Messungen an Eisenoberflächen, die mit verschiedenen dicken Germaniumschichten vergütet wurden. Germanium wurde als vergütendes Material gewählt, weil sein optimaler Vergütungswinkel noch relativ dicht bei  $\psi_c$  liegt und damit die Resonanzreflektivität noch groß sein sollte und weil es trotzdem gute Unterdrückungsfaktoren erwarten läßt. Außerdem oxidiert es nur geringfügig, und die mittlere Elektronendichte der möglichen Oxide liegt sehr nahe an der des Elements.

Es wurde versucht, auch bei diesen Ergebnissen Anpassungsrechnungen vorzunehmen. Um den Einfluß der Dickenvariationen zu erfassen, wurde angenommen, daß die aktuellen Dicken über ein gewisses Intervall gleich verteilt sind, über das gemittelt wird. Als zusätzliche freie Parameter gehen deshalb ein das Atomvolumen des Germaniums, die mittlere Dicke und die Breite der Dickenverteilung in Prozent der mittleren Dicke.

Tabelle 6 stellt die so gewonnenen besten Parameter für die einzelnen Spiegel zusammen. Zum Vergleich sind aufgeführt die Dickenwerte, die sich ergeben, wenn man die Massenbelegung, wie man sie aus Röntgenfluoreszenzmessungen erhält, mit den ermittelten Germaniumdichten umrechnet.

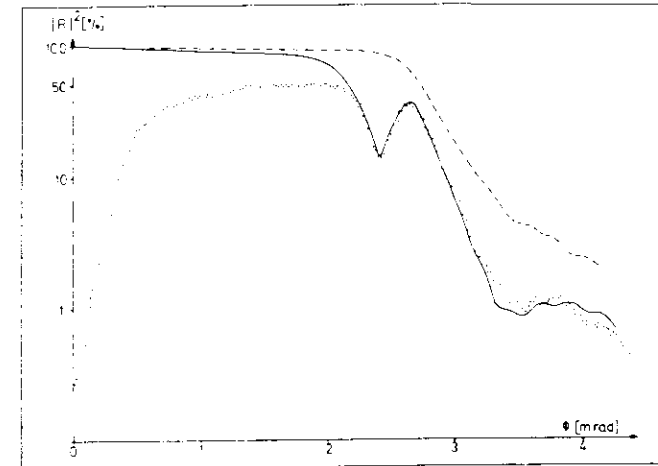


Abb. 32 b Eisen vergütet mit 190 Å Germanium

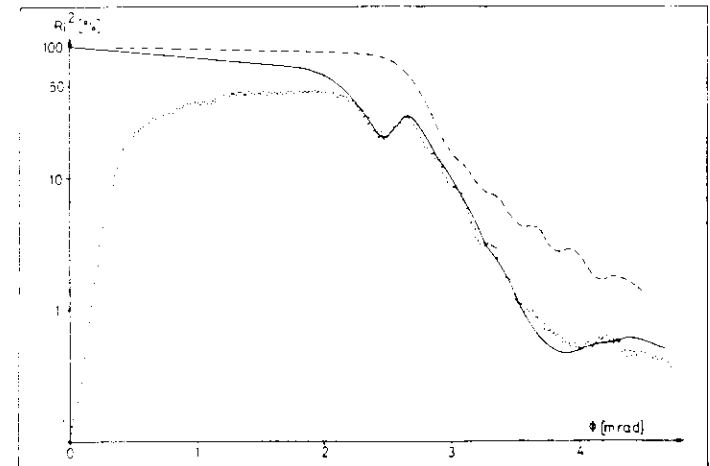


Abb. 32 c Eisen vergütet mit 160 Å Germanium

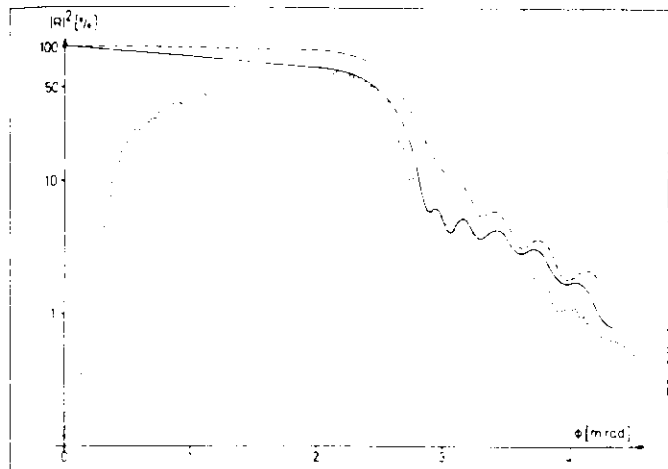


Abb. 32 d Eisen vergütet mit 110 Å Germanium

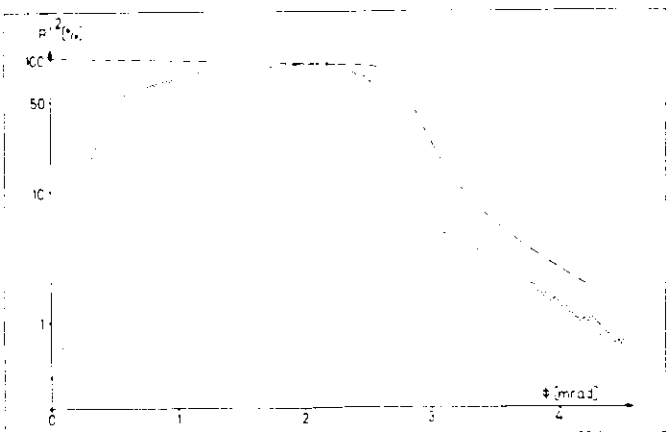


Abb. 32 e Eisen vergütet mit ca. 60 Å Germanium

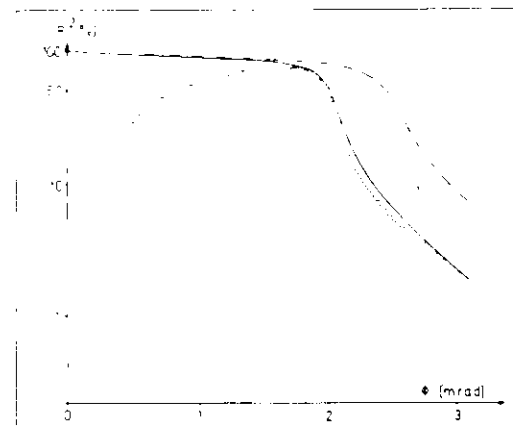


Abb. 32 f Dicke Germaniumschicht auf Eisen

32	$\psi_c$	$\phi_c$	$d_{Fe}$	$d_{Ge}$	$d_{x-ray}$	$\Delta d$
a	2,85 mrad	—	1000 Å	—	—	—
b	2,75 mrad	2,05 mrad	1000 Å	190 Å	230 Å	38,5 %
c	2,75 mrad	2,05 mrad	800 Å	160 Å	190 Å	37,5 %
d	2,70 mrad	2,00 mrad	700 Å	110 Å	150 Å	32,5 %
e	—	—	—	~ 60 Å	95 Å	—
f	—	2,05 mrad	—	>1000 Å	—	—

Tab. 6 Anpassungsparameter für Abbildung 32

Der Reflexionsverlauf, wie er sich aus den Rechnungen ergibt, ist mit einer durchgezogenen Linie eingezeichnet. Die unterbrochenen Linien geben als Referenz die Reflektivität unvergüteten Eisens mit den gleichen elektronischen Parametern. In Abbildung 32 b und 32 c folgt die gemessene Reflektivität sehr gut den theoretischen Erwartungen. Die geringe Ausprägung der Minima 2. Ordnung ist eine Folge der großen Schichtdickenvariation. Rechnungen mit wohldefinierter Dicke der Germaniumschicht zeigen, daß in diesem Fall trotz der vergrößerten Atomvolumina sehr viel bessere Unterdrückungsfaktoren möglich wären. Es verbleibt aber nur eine Reduktion bezüglich der Reflektivität unvergüteten Eisens um Faktoren 3 bis 5. Bei der geringeren Vergütungsstärke von Abbildung 32 d ist ein Minimum

nicht mehr nachzuweisen, und die Reflektivität bei größeren Winkeln bleibt wie im Fall unvergüteten Eisens hinter der Theorie zurück. Der Verlauf in Abbildung 32 e konnte schließlich nicht mehr in befriedigender Weise durch eine theoretische Kurve dargestellt werden. Bei dieser Schichtdicke versagt offensichtlich das Konzept einer gleichverteilten Dickenvariation. Größere Teile der Oberfläche sind möglicherweise ohne Vergütung, wenn das Germanium bei kleinen Dicken Inselstruktur hat. Als strichpunktierte Referenz ist hier ein dicker unvergüteter Eisenspiegel mit  $\Psi_c = 2,85$  mrad gewählt.

In allen Fällen war die Elektronendichte des Germaniums stark reduziert ( $\Phi_c = 2,05$  mrad statt 2,6 mrad). Abbildung 32 f zeigt eine Messung einer dicken aufgedampften Germaniumschicht, die verdeutlicht, daß dies kein spezieller Effekt der dünnen Vergütungsschichten ist. Die strichpunktierte Referenz gibt hier das Reflexionsverhalten von Germanium mit natürlicher Dichte.

Die Messungen liefern zusammengefaßt folgende Erkenntnisse über die Unterdrückungseigenschaften Ge vergüteter Eisenspiegel: Trotz verringer Elektronendichten mußten große Unterdrückungsfaktoren möglich sein, wenn es gelänge, die Dickenvariationen zu reduzieren. Bei den vorliegenden Spiegeln betrug sie fast 40 % und führte dazu, daß nur Minima 2. Ordnung bei relativ großer Vergütungsdicke  $> 150$  Å eine Reduktion der elektronischen Reflektivität um einen Faktor 4 liefern. Immerhin ist auch dies schon bei Mehrfachreflexionen eine bedeutende Verbesserung. Das genaue Verhältnis von elektronischer zu Kernstreuung muß aus Messungen bei der Resonanzenergie ermittelt werden.

In der Zukunft könnten die aufgetretenen Schwierigkeiten bei Zinnspiegeln geringer sein, da Zinn einen sehr viel kleineren Schmelzpunkt als Eisen hat und nach dem Aufdampfen ohne Zerstörung der Glasunterlage rekristallisiert werden kann.

## VI. Resonanzstreuung an vergüteten Eisenspiegeln bei streifendem Einfall

### A) Einfluß der Kernstreuränge auf die Reflektivität

Liegt die Energie der einfallenden Strahlung in der Nähe einer Kernresonanz, so erreicht auch die bisher vernachlässigte Kernstreuränge relevante Größenordnungen. Die die Reflektivitäten bestimmenden Wurzelausdrücke haben dann die Gestalt:

$$\sqrt{\dots} \rightarrow \sqrt{1 + (-\Psi_c^2 + i / (k | \psi_{obs}^{\Psi} ) + \lambda^2 \rho / \pi f_{\lambda}^0) / \Phi^2} \quad (37)$$

wobei sich die  $f_{\lambda}^0$  unter Berücksichtigung der entsprechenden Magnetfeldrichtung aus (17) zu

$$f_{\lambda}^0 = f_n(\vec{k}_0, \hat{e}_0, \vec{k}_0, \hat{e})$$

ergibt.

Wegen des Resonanzennenners in (17) wechselt der Realteil von  $f_{\lambda}^0$  beim Durchgang durch die Resonanz das Vorzeichen. Es zeigen sich dann Interferenzeffekte zwischen dem konstanten elektronischen Beitrag in (37) und dem variablen Kernanteil. Kompensieren sich die beiden gerade, so geht die Reflektivität gegen null. Auf der anderen Seite der Resonanz wird sie verstärkt.

Abbildung 33 zeigt den Verlauf der Reflektivität unvergüteten Eisens bei verschiedenen Energien. Betrachtet wird die stärkste mögliche Kernresonanz, nämlich, bei  $\vec{B} \parallel \vec{k}_0$ , der niederenergetische M=1-Übergang, der gemäß III F nur rechtszirkuläre Photonen streut.

Kurve 1 liegt mit  $\Delta/\Gamma = -43$  energetisch oberhalb der Resonanz bei  $-54,5$ . Bei nicht zu großem Winkel zeigt sich deutlich konstruktive Interferenz. Die Kurve 2 in der Resonanz reicht weit über den Bereich größerer elektronischer Reflektivität hinaus, da hier  $f_{\lambda}^0$  über die elektronischen Beiträge dominiert. Bei 6 mrad, wo die Resonanzreflektivität immerhin noch bei 50 % liegt, erfolgt elektronische Streuung nur noch mit weniger als 1 %. Für die Kurve 3 unterhalb der Resonanz reduziert destruktive Interferenz die Reflektivität erheblich. Die unterbrochene Kurve 4 gibt als Referenz die rein elektronische Streuung weit außerhalb der Resonanz.

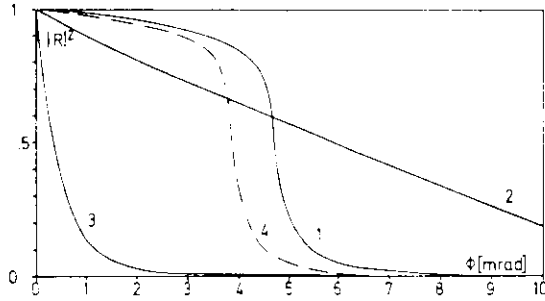


Abb. 33 Reflektivität von  $^{57}\text{Fe}$  in der Nähe der  $1/2-1-3/2$ -Resonanz:  
 $\Delta/\Gamma=1$ ): -43; 2): -54,5; 3): -60; 4): -100;  $\Delta = \hbar\omega - E_{\text{res}}$

Abbildung 34 zeigt die Reflexionsverhältnisse, aufgetragen bei  $\Phi = 4,23$  mrad gegen die Energie, wobei rechts- und linkszirkuläre Polarisation durch die durchgezogene bzw. unterbrochene Linie unterschieden sind. Das unterschiedliche Reflexionsverhalten für die beiden Polarisationsarten liegt an der invertierten Reihenfolge der starken und schwächeren Resonanz, was zu abweichenden Interferenzerscheinungen der Linien gleicher Polarisation untereinander führt.

Die Vergütung der reflektierenden Oberfläche sollte die elektronische Reflektivität reduzieren und damit die Interferenz unterdrücken. Abbildung 35 zeigt die entsprechenden Reflektivitäten für eine gemäß Tabelle 4 optimale Tellurvergütung. Tatsächlich bleibt nur die Interferenz der Linien untereinander erhalten, die elektronische Reflektivität ist unerheblich. Die verbleibende Asymmetrie der Kurven ist eine Folge der Absorption durch Photoeffekt.

Die maximalen Reflektivitäten der starken Kernresonanzen bleiben bei 70 %, mit den elektronischen  $T_e$ -Werten aus Tabelle 4 ergäbe sich in diesem Fall ein Verhältnis von Kern- zu Elektronstreuung von  $1,1 \cdot 10^6$ , und auch mit den gemittelten Werten aus Tabelle 5 verbleibt immer noch ein Faktor  $7,4 \cdot 10^3$ . In dieser Größenordnung könnten also die effektiven Unterdrückungsfaktoren liegen, wenn sich die den Rechnungen zugrunde gelegten idealisierten Verhältnisse realisieren ließen.

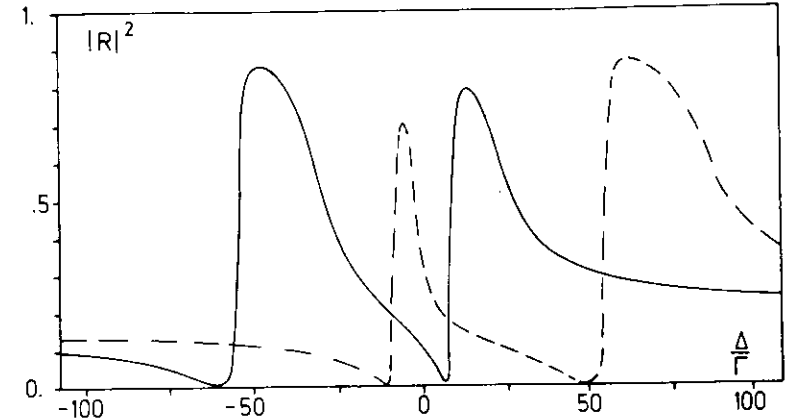


Abb. 34 Reflektivität von Eisen gegen die Energie bei  $\Phi = 4,23$  mrad;  
 $\Delta = \hbar\omega - E_{\text{res}}$

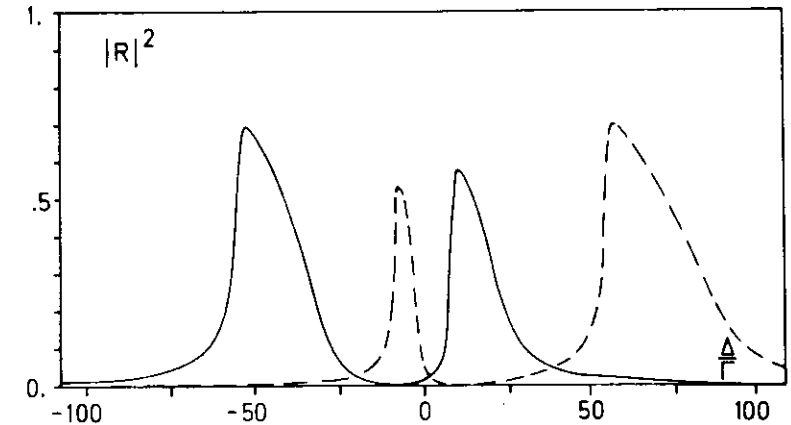


Abb. 35 Reflektivität Te-vergüteten Eisens gegen die Energie;  
 $d_{\text{Te}} = 76 \text{ \AA}$ ;  $\Phi = 4,23$  mrad;  $\Delta = \hbar\omega - E_{\text{res}}$

**B) Beschränkende Einflüsse auf die Unterdrückungsfaktoren**

In Abschnitt V E wurde im Detail diskutiert, daß die Reduktion der elektronischen Reflektivität wegen der großen Dickenvariation nicht so stark wie gewünscht ist. Aber auch der Beitrag der Kernstreuung kann durch ungünstige Nebenbedingungen erniedrigt werden. Der Kern erfährt die Eigenschaften seiner Umgebung im wesentlichen über die Wechselwirkung mit den elektromagnetischen Feldern. Die <sup>57</sup>Fe-Kerne in der Eisenschicht unterliegen deren magnetischem Hyperfeinfeld. Bisher wurde angenommen, daß nur dieses Feld, mit wohldefinierter Richtung und festem Wert, existiert. Die Ausrichtung des Feldes innerhalb der Schichtebene gelingt schon mit kleinen Feldstärken von 100 bis 200 G. Für kleinere Spiegel reichen daher kleine Permanentmagnete, für größere sind Helmholtz Anordnungen praktikabel. Kleine Abweichungen (einige Grad) von der optimalen Geometrie beeinflussen die Streueigenschaften bei nicht zu kleinen Einfallswinkeln kaum.

Restwechselwirkungen und Schwankungen der Feldstärke, die die Linienbreite scheinbar vergrößern, reduzieren dagegen die Reflektivitäten unter Umständen, vor allem bei großen Einfallswinkeln, stark. Von Bernstein und Campbell /39/ wurden erste Messungen der resonanten Reflektivität an unvergütetem Eisen vorgenommen. Die Analyse der Meßergebnisse gelang allerdings nicht befriedigend. Auch sie konstatieren allerdings eine zu geringe elektronische Streulänge. Außerdem ergab sich auch für das Verhältnis von  $\Gamma/\Gamma_y$  ein von 11% abweichender Wert.

Restwechselwirkungen auf Grund abweichender Elektronenkonfigurationen sind am wahrscheinlichsten in der Nähe der Oberfläche. Trotzdem sei hier von der einfachen Modellvorstellung ausgegangen, daß sie nur eine über das ganze Medium verteilte Variation der Zentralfrequenz  $\omega_0$  des individuellen Kerns bewirken. Dieser statistische Einfluß muß ebenso behandelt werden, wie dies schon für die statistisch besetzten Grundzustandsunterzustände in II E geschah. Die kohärente Streulänge des Gesamtsystems ist dann gegeben durch die Mittelung:

$$\bar{f}_h(\omega) = \int f_r(\omega - \omega'_0) g(\omega'_0) d\omega'_0$$

g beschreibt die Verteilung der Zentralfrequenzen. Unter der Voraussetzung, daß g mit einer Lorentzverteilung angenähert werden kann, läßt sich das Integral ausführen. Als Ergebnis erhält man, daß im Resonanznenner die

Linienbreite zu ersetzen ist durch  $\Gamma_{eff} > \Gamma$ . Diesen Effekt der größeren mittleren Linienbreite bezeichnet man als inhomogene Verbreiterung. Man sieht, daß als Folge die Kernstrelänge kleiner wird und dementsprechend die Dominanz der Kernstreuung im Resonanzbereich nicht so ausgeprägt sein wird, wie in Abbildung 33 dargestellt. Das genaue Ausmaß dieser Schwächung hängt vom aktuellen Wert von  $\Gamma_{eff}$  ab und muß im Experiment ermittelt werden.

**C) Apparatur zur Messung resonanter Reflektivitäten bei streifendem Einfall**

Als Strahlungsquelle stand ein <sup>57</sup>Co-Präparat der Firma Amersham, England, zur Verfügung. Die Aktivität (50 mCi bei Produktion im Juli 1979) war in die Kante einer Palladiumfolie eindiffundiert. Dies liefert eine Einlinienquelle mit den Abmessungen 0,1 x 30 mm<sup>2</sup>. Nach Angabe des Herstellers betrug der Anteil der resonanzfähigen Quanten ca. 60% und die Linienverbreiterung der Quelle  $\Gamma_{eff}/\Gamma$  1,5. Da die  $\gamma$ -Energie vom Kernzerfall determiniert ist, konnte auf ein Vormonochromator-Schlitz-System, wie es bei der Bestimmung der elektronischen Reflektivität nötig war, verzichtet werden. Eine weitere Vereinfachung des Aufbaus und damit eine Reduzierung der Justierungsprobleme ist möglich, wenn die Beschränkung der Divergenz des Strahls durch den Spiegel selbst geschieht, wie in Abbildung 36 schematisch dargestellt. Wird dazu die Streuung am Goniometer mittels einer groben Blende in der Bleiabschirmung unterdrückt, so ist die Divergenz des wirksamen Strahls gegeben durch die Summe der Projektion des Spiegeldurchmessers (50 mm) und der Quellenbreite (0,1 mm) geteilt durch den Abstand Quelle - Spiegel (10<sup>3</sup> mm). Bei Einfallswinkeln um 4 mrad führt dies, eine optimale Justierung der Quelle vorausgesetzt, zu einer Divergenz von  $\Delta\Phi = 0,3$  mrad.

Der direkte Einfall der Strahlung auf den Detektor wird durch zwei versetzte Strahlstopps verhindert. Es verbleibt trotzdem eine beträchtliche Untergrundzählrate, die auf Höhenstrahlung ( $\approx 0,5$  Photonen/s) sowie die Streuung von Quellenquanten an der Luft und an den Strahlbegrenzungen zurückgeht.

Um die energieabhängige Reflektivitätskurve des Spiegels durchzufahren, muß die Photonenenergie über den Dopplereffekt variiert werden; die Quelle

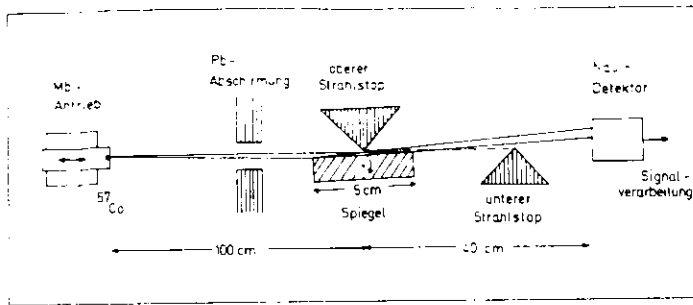


Abb. 36 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Messung von Resonanzreflektivitäten

wird zu diesem Zweck auf einen konventionellen Möb-bauerantrieb montiert. Der zusätzliche Freiheitsgrad der Quellenbewegung kann Einfluß auf die Form der gemessenen Spektren nehmen: Bewegt sich die Quelle nämlich nicht exakt entlang der Verbindungslinie Quelle – Spiegelmittelpunkt, so führt dies zu einem sich mit der Geschwindigkeit ändernden Einfallswinkel. Eine senkrechte Variation von 0,2 mm, die innerhalb der Justiergenauigkeit läge, würde zu einer Änderung des Einfallswinkels um 0,2 mrad führen, was schon in der Größenordnung der untersuchten Winkelschrittweite liegt.

Die Definition des Hyperfeinfeldes in den Eisenschichten geschah mittels auf die Spiegelseitenflächen aufgeklebter Permanentmagnete, die ein Feld um 100 G erzeugten. Die Feldrichtung wurde parallel zum Strahl gewählt.

#### D) Messungen an Ge-vergüteten <sup>57</sup>Fe-Spiegeln

Es wurden zwei Germanium-vergütete Eisenspiegel (hier A und B genannt) mit einer Anreicherung des <sup>57</sup>Fe-Isotops über 90 % hergestellt. Es wurde versucht, dabei die elektronischen Daten des in Abbildung 32a vorgestellten Spiegels zu reproduzieren, der die besten Unterdrückungseigenschaften versprach. Aufgrund technischer Schwierigkeiten beim Produktionsvorgang war der Spiegel A von schon optisch erkennbarer geringerer Qualität (Tröpfchenstruktur in der aufgedampften Schicht).

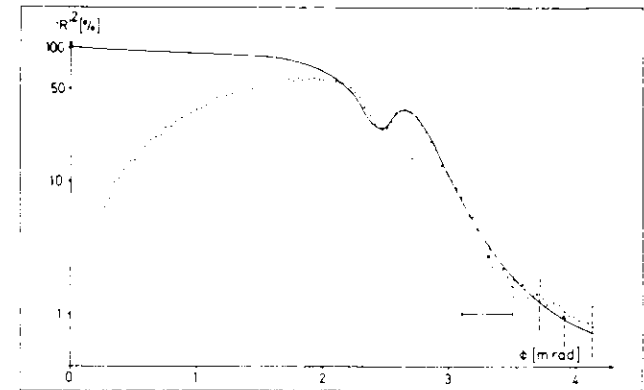


Abb. 37a Elektronische Reflektivität des Spiegels A

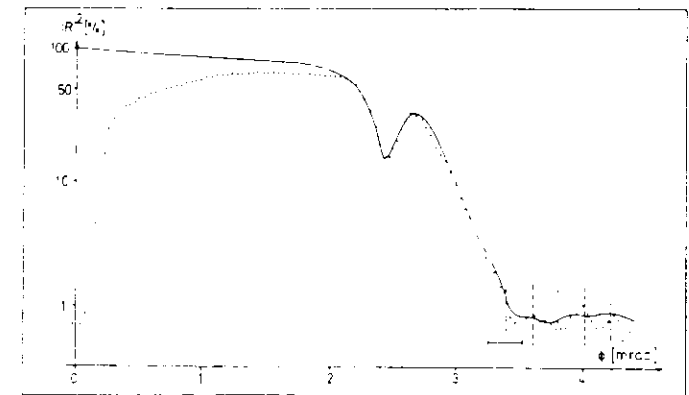


Abb. 37b Elektronische Reflektivität des Spiegels B

Zur Kontrolle der elektronischen Reflexionseigenschaften und Parameter wurden die Spiegel mit den Methoden aus Abschnitt V untersucht. Abbildung 37 stellt die jeweiligen Ergebnisse von Messung und Anpassungsrechnung vor. In Tabelle 7 sind die so ermittelten Parameter ( $\lambda = 0,86 \text{ \AA}$ ) für die Spiegel zusammengefaßt.

	$\psi_c$	$\phi_c$	$d_{Ge}$	$\Delta d$
A	3,45 mrad	2,30 mrad	165 Å	45 %
B	3,45 mrad	2,40 mrad	185 Å	37 %

Tab. 7 Elektronische Streuparameter der  $^{57}\text{Fe}$ -Spiegel

Spiegel B ist also sowohl in Hinblick auf die Elektronendichte des Germaniums und dessen Dickenvariation als auch im Hinblick auf die mittlere Dicke der Vergütung günstiger. Dies dokumentiert sich vor allem darin, daß Spiegel A nicht einmal andeutungsweise ein Minimum 2. Ordnung zeigt.

Anschließend wurde für beide Spiegel in konstanten Schritten des Einfallswinkels im Bereich von 5 bis 4 mrad die Energieabhängigkeit der Reflektivität bestimmt. Dazu wurde zuerst, bei Antriebsgeschwindigkeiten außerhalb der Resonanz, in der oben beschriebenen Apparatur erneut die elektronische Reflektivitätskurve gemessen und dann relativ zum ersten Minimum der interessierende Winkelbereich festgelegt. In ihm wurde das Goniometer in Schritten von 0,25 mrad weitergeschaltet und in jeder Stellung ein Mößbauerreflexionsspektrum aufgenommen. Dazu wurde in einem Vielkanal im MCS-Mode, der mit dem Geschwindigkeitsfortschaltungssignal des Antriebs synchronisiert war, die reflektierte Intensität gespeichert. Die Spektren konnten dann zur weiteren Analyse in einen Rechner ausgelesen werden. Im Rahmen der folgenden Anpassungsrechnungen wurden dann auch die absoluten Winkelstellungen, wie sie in Abbildung 37 als vertikale Linien angegeben sind, exakt bestimmt.

Für die beiden Spiegel wurde ein etwas abweichendes Meßprogramm durchgeführt: Zum einen wurde für Spiegel A der Abstand Quelle – Spiegel etwas kleiner gewählt; dies führt zu einem günstigeren Verhältnis von reflektierter Intensität zu Untergrund, da eine größere Strahldivergenz, über die allerdings später gemittelt werden muß, ausgenutzt wird. Für die Messungen beim kleinsten Winkel sind die Mittelungsbereiche in Abbildung 37 als horizontale Balken angegeben. Zum anderen wurde für Spiegel A mit ab-

nehmendem Winkel die Meßzeit so verringert, daß die Spektren ungefähr gleiche Zählrate aufweisen. Die mittlere Meßzeit betrug zwei Tage pro Spektrum.

Wegen des schlechteren Effekt-zu-Untergrund-Verhältnisses mußte für die Messung an Spiegel B die Meßzeit auf fünf Tage pro Spektrum ausgedehnt werden. Sie wurde außerdem für alle Messungen annähernd konstant gehalten.

Abbildung 38 und 39 zeigen die Messungen für die beiden Spiegel. Ebenfalls dargestellt sind die Ergebnisse von Anpassungsrechnungen. Bei diesen Anpassungsrechnungen wurde folgendermaßen vorgegangen.

Die Daten der elektronischen Reflektivitätsbestimmungen (die die elektronischen Reflektivitäten festlegen), der Quelle und der geometrischen Faktoren der Apparatur wurden für jeden Spiegel als konstante Parameter vorausgesetzt. Ebenso wurden als konstant eingegeben die charakteristischen Daten des  $^{57}\text{Fe}$  wie Aufspaltungsenergien (in Abbildung 38 und 39 als Pfeile dargestellt), Debye-Temperatur, Anreicherung u. ä.

Dann erfolgte für jede Polarisation bei der jeweilig betrachteten Geschwindigkeit bzw. Energie, unter Mittelung über die Dickenvariation und die Divergenz, die Reflektivitätsberechnung, wobei der Einfallswinkel im Rahmen der in C) diskutierten Grenzen variieren konnte. Ein so gewonnenes Energiespektrum wurde mit dem resonanten Anteil des Quellspektrums gefaltet. Für den nichtresonanten Anteil wurde die reflektierte Intensität weit außerhalb der Resonanz bestimmt. Die endgültige theoretische Kurve ergab sich dann als Summe dieser Polarisationsteilspektren und des Untergrundes.

Als innerhalb der jeweiligen Spektrenserie konstante, bezüglich der beiden Spiegel abweichende Parameter standen der Anpassung offen: a) das Maß der Geschwindigkeits-Winkelkorrelation, b) die Geschwindigkeitseichung, c) die absolute Winkelskala und d) die Intensitätsverhältnisse.

Es wurde dabei eine konstante Primärintensität optimiert, die im Hinblick auf Meßzeit und Spiegelprojektion korrigiert wurde. Eine strenge Ableitung dieser Primärintensität aus der Aktivität der Quelle ist schwierig, da bei der vorliegenden Quellengeometrie die Abschätzung von Absorptionseffekten und Strahlungscharakteristik unsicher ist. Andererseits ist auch die Simulation des genutzten Strahlquerschnitts mittels eines entsprechenden Spaltes nicht mit ausreichender Genauigkeit möglich. Immerhin läßt sich



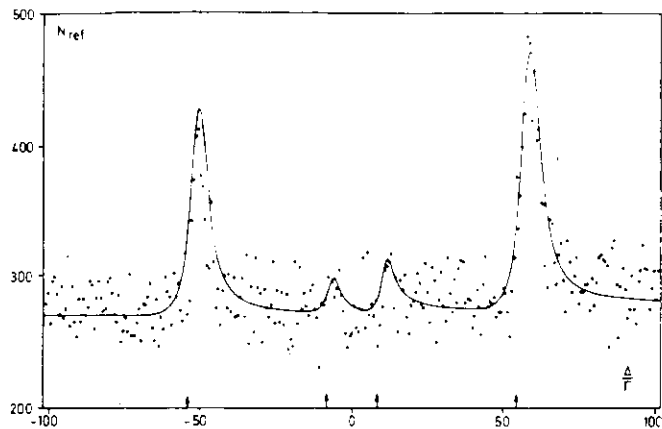


Abb. 38a Reflektierte Intensität für  $\Phi = 5,00$  mrad

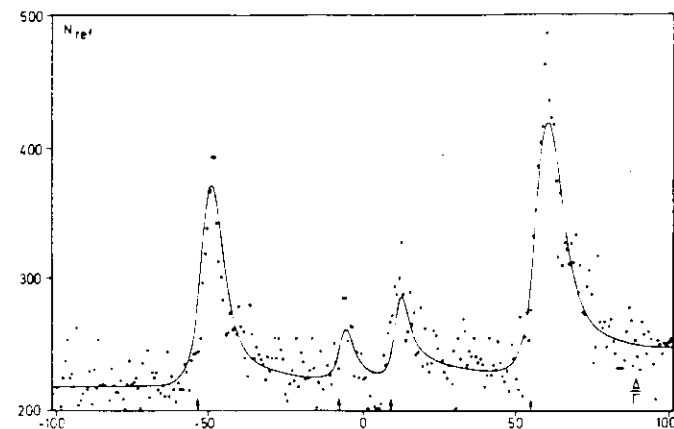


Abb. 38c Reflektierte Intensität für  $\Phi = 4,50$  mrad

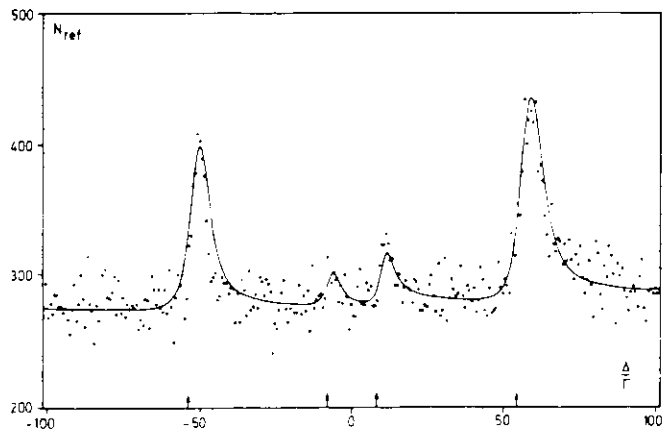


Abb. 38b Reflektierte Intensität für  $\Phi = 4,75$  mrad

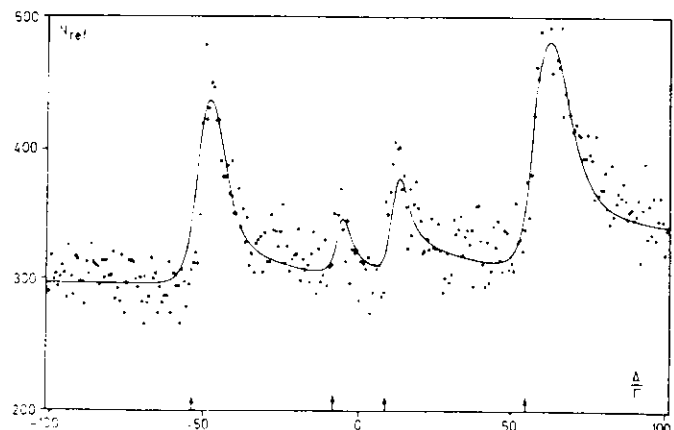


Abb. 38d Reflektierte Intensität für  $\Phi = 4,25$  mrad

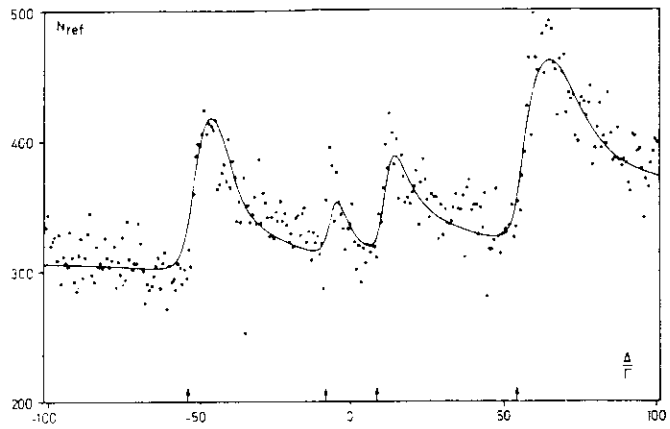


Abb. 38e Reflektierte Intensität für A,  $\Phi = 4,00$  mrad

38	$\Phi$	$\Gamma_{\text{eff}}/\Gamma$	$r_e$	$r_r$	$r_r/r_e$
a	5,00 mrad	4,45	0,61 %	21,2 %	35
b	4,75 mrad	4,45	0,83 %	26,7 %	32
c	4,50 mrad	4,50	1,46 %	33,1 %	23
d	4,25 mrad	4,50	2,86 %	40,3 %	14
e	4,00 mrad	4,90	5,47 %	46,9 %	8

Tab. 8 Streuparameter zur Abbildung 38

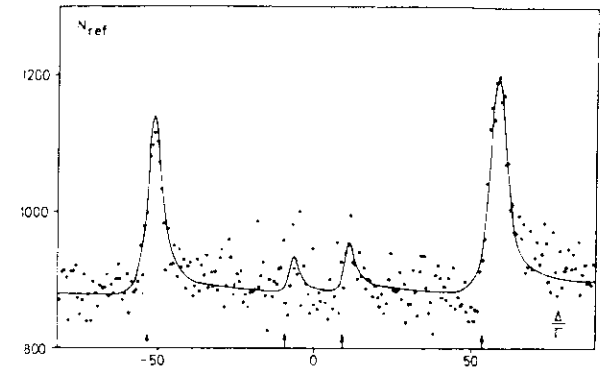


Abb. 39a Reflektierte Intensität für B,  $\Phi = 5,10$  mrad

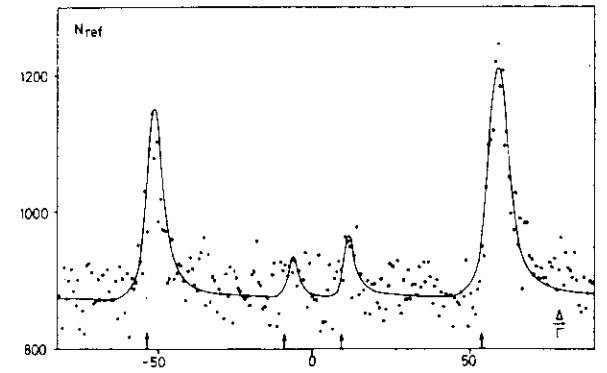


Abb. 39b Reflektierte Intensität für B,  $\Phi = 4,85$  mrad

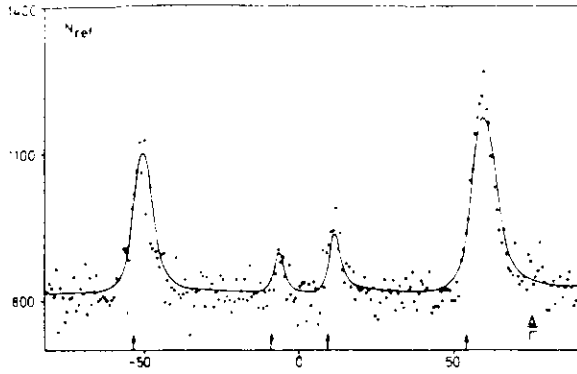


Abb. 39 c Reflektierte Intensität für B,  $\Phi = 4,60$  mrad

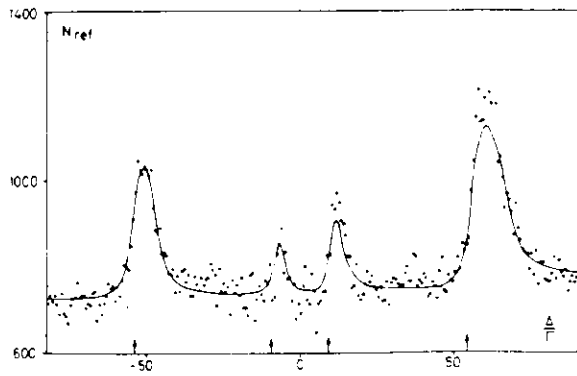


Abb. 39 d Reflektierte Intensität für B,  $\Phi = 4,35$  mrad

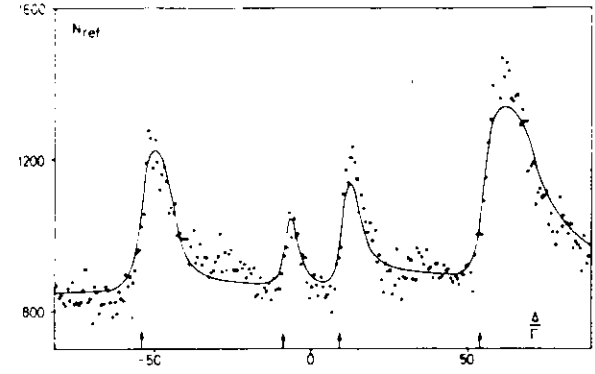


Abb. 39 e Reflektierte Intensität für B,  $\Phi = 4,10$  mrad

39	$\Phi$	$\Gamma_{\text{eff}}/\Gamma$	$r_e$	$r_r$	$r_r/r_e$
a	5,10 mrad	2,70	0,86 %	33,0 %	38
b	4,85 mrad	2,70	0,73 %	35,6 %	49
c	4,60 mrad	2,70	0,61 %	39,7 %	65
d	4,35 mrad	2,70	1,07 %	47,4 %	43
e	4,10 mrad	2,70	2,91 %	53,0 %	18

Tab. 9 Streuparameter zur Abbildung 39

abschätzen, daß die angepaßte Intensität in der richtigen Größenordnung liegt.

Einziger Parameter, für den eine Variation mit dem Einfallswinkel zugelassen wurde, war die inhomogene Linienverbreiterung.

Mit den so bestimmten Parametern lassen sich Reflektivitätskurven ohne Einfluß der Quelleneffekte berechnen. Die aus ihnen entnommenen Reflektivitäten ( $r_e$ : elektronisch einschließlich Winkel- und Dickenmittelung, wegen der größeren Divergenz ergeben sich in Gebieten starken Anstiegs leichte Abweichungen zu Abbildung 37;  $r_r$ : resonant im Maximum für links-zirkulare Polarisation allein), Winkel und Linienbreiten sind in den Tabellen 8 und 9 zusammengestellt.

Die Meßspektren werden von den angepaßten Kurven in sehr guter Weise wiedergegeben. Erst bei den kleinsten Winkeln zeigen sich leichte Abweichungen. Dies ist verständlich, da bei diesen kleineren Winkeln auch schon Streuteile mit sehr kleiner Streustärke zum Tragen kommen. So wird hier auch in geringem Maße ein Streubeitrag der  $M=0$ -Übergänge merklich, der auf eine nicht vollständige Ausrichtung des Hyperfeinfeldes zurückgeht.

Bei Spiegel A wird die Linienverbreiterung mit kleinerem Winkel größer und liegt im Mittel fast einem Faktor zwei über den entsprechenden (konstanten) Werten von B, was eine Verschlechterung der Unterdrückungseigenschaften nach sich zieht.

Dies unterstützt die Vorstellung, daß die Linienverbreiterung im wesentlichen ein Oberflächeneffekt ist. Dort weicht die Struktur stark von der des Festkörpers ab, so daß Restwechselwirkungen in erhöhtem Maße wirksam werden. Die geringere Qualität des Spiegels A dokumentiert sich aber gerade in einer Vergrößerung der Oberfläche. Weiter nimmt an der Streuung bei abnehmendem Winkel, wegen der wachsenden Reflektivität, eine immer dünnere Oberflächenschicht an der Reflexion teil. Der Anteil des Volumens mit starker Restwechselwirkung wird also immer größer, was sich zumindest für Spiegel A in einem zunehmenden  $\Gamma_{eff}$  ausdrückt.

Der bessere Spiegel B wird von solchen Effekten weniger beeinflusst. Die Verbreiterung ist fast einen Faktor zwei geringer. Eine signifikante Variation konnte im untersuchten Winkelbereich nicht festgestellt werden.

Den Tabellen 8 und 9 entnimmt man allerdings, daß die erreichten Unter-

drückungsfaktoren nicht entscheidend von der jeweiligen Linienbreite, sondern vielmehr im wesentlichen durch die elektronische Restreflektivität bestimmt werden. Da diese bei A stetig zunimmt, zeigt sich hier kein Maximum der Unterdrückung, während für B ein optimaler Winkel von 4,60 mrad existiert. Hier wird immerhin ein Verhältnis von Kern- zu Elektronstreuung von über 60 erreicht bei der erheblichen Maximalreflektivität von fast 40 %.

In Abschnitt VIII wird abgeschätzt, daß mit derartigen Spiegeln die Präparation eines nutzbaren Mößbauerbandes aus der Synchrotronstrahlung mittels vier Reflexionen möglich ist. Allerdings unter Erniedrigung der resonanten Intensität auf ca. 0,6 Photonen/s.

Eine Erhöhung dieser Intensität ist, außer bei Ausnutzung intensiverer Quellen, nur mit einer Verbesserung der Unterdrückungseigenschaften möglich. Da die resonante Reflektivität nicht wesentlich erhöht werden kann (maximal 60 – 70 %), müssen sich die Bemühungen auf eine Verbesserung der Vergütung konzentrieren. Dann könnte die Zahl der nötigen Reflexionen verringert und eine höhere Endintensität erreicht werden.

## VII. Zeitverhalten der gestreuten Strahlung nach Anregung durch einen Synchrotronpuls und zeitdiskriminierender Detektor

### A) Allgemeines zum Zeitverhalten

Die Strahlungspulse der im Synchrotron umlaufenden Bunche bestehen aus einzelnen Ein-Photon-Paketen mit einer individuellen charakteristischen Zeit (selbst nach Einschränkung der Energiebreite durch den Vormonochromator) von unter  $10^{-16}$  Sekunden. Die Breite der zeitlichen Verteilung der Photonen im Puls ist kleiner als  $10^{-10}$  Sekunden. Während die Streuung durch Elektronen im hier interessierenden Bereich energieunabhängig und damit instantan ist, haben Resonanzstreuungsvorgänge eine typische Zeitverzögerung von  $10^{-6}$  bis  $10^{-9}$  Sekunden. Für sie kann die Anregung durch den Synchrotronpuls als  $\delta$ -artig angenommen werden. Bezüglich eines Bunches treffen alle Photonen zur Zeit  $t = 0$  gleichzeitig auf das reflektierende System, und die Anregung klingt im Verhältnis zu den typischen Zeiten der Resonanzstreuung schnell wieder ab.

$i_0(E_0)$  sei dann die Photonenzahl/(eV mrad<sup>2</sup> Puls) bei der Resonanzenergie, kleine Abweichungen davon wie beim Verlassen der Resonanz verändern die einfallende Intensität nicht. (Die Pulsrepetitionsfrequenz im Single-Bunch-Betrieb liegt bei 1 MHz.)

Die zeitliche Verteilung der resonanzgestreuten Intensität zeigt bei dieser Anregungsform eine Modulation ( $f/40$ ), und das Intensitätsmaximum ist zu Zeiten  $t_m > 0$  verschoben. Dies ermöglicht an Hand des Zeitverhaltens eine Unterscheidung von elektronisch und resonanzgestreuten Photonen.

Erfolgt die Resonanzstreuung an einem System mit aufgespaltenen Unter-niveaus, so treten zusätzlich Oszillationen mit der Frequenz der Niveauabstände auf. Sie sind in der Regel aber so schnell, daß sie von den üblichen Detektoren nicht aufgelöst werden können und seien deshalb hier nicht weiter diskutiert.

Das reflektierende System (unter Umständen unter Einschluß des Detektors) werde durch seine Reflektivität  $|R(E)|^2$  beschrieben. (Auf die Mitführung des Polarisationsindex sei hier verzichtet.) Dann ist die im Energieintervall  $dE$  reflektierte Intensität:

$$dI_r(E) = i_r(E) dE = i_0(E_0) |R(E)|^2 dE$$

Die Gesamtzahl der pro Raumwinkel reflektierten Photonen beträgt dann:

$$N_r = \int dI_r(E) = i_0(E_0) \int R(E) R^*(E) dE$$

Geht man zur Fouriertransformierten

$$R(E) = \int R(t) e^{iEt/\hbar} dt$$

bzw.

$$R(t) = (2\pi)^{-1} \int R(\omega) e^{-i\omega t} d\omega$$

über, so folgt:

$$\begin{aligned} N_r &= i_0(E_0) \int dt \int dt' R(t) R^*(t') \int dE e^{iE(t-t)'/\hbar} \\ &= \int dt i_0(E_0) h |R(t)|^2 \\ &= \int dt i_r(t) \end{aligned}$$

Die Photonendichte pro Zeitintervall im reflektierten Strahl ist also gegeben durch:

$$i_r(t) = i_0(E_0) h \left| (2\pi)^{-1} \int R(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \right|^2$$

### B) Zeitverhalten nach reiner Kernstreuung bei streifendem Einfall

Um das Zeitverhalten der Intensität nach der Streuung an einem vergüteten Spiegel abzuschätzen, werde hier folgende vereinfachte Situation betrachtet:

Die Vergütung sei ideal, d. h. gemäß (36) werde angenommen:

$$\begin{aligned} e^{i2g(\phi_0)d} &= -1 \\ 1 - \phi_c^2/\phi_0^2 + i/(k\phi_0^2|l_{\text{abs}}^{\phi_0}|) &= \sqrt{1 - \psi_c^2/\phi_0^2 + i/(k\phi_0^2|l_{\text{abs}}^{\psi_0}|)} \end{aligned}$$

Damit wird:

$$\begin{aligned} R(\omega, \phi_0) &= \frac{R^{01}(\phi_0) - R^2(\omega, \phi_0)}{1 + R^{01}(\phi_0)R^2(\omega, \phi_0)} \\ &= \frac{1 - \sqrt{1 + \lambda^2 \rho / \pi f_n^0(\omega)} / (\phi_0^2 - \psi_c^2 + i/(k|l_{\text{abs}}^{\psi_0}|))}{1 + \sqrt{1 + \lambda^2 \rho / \pi f_n^0(\omega)} / (\phi_0^2 - \psi_c^2 + i/(k|l_{\text{abs}}^{\psi_0}|))} \end{aligned}$$

Weiter werde  $\bar{B}||\bar{K}_0$  angenommen und nur der 1/2-1-3/2-Übergang betrachtet, dann ist unter Berücksichtigung einer möglichen inhomogenen Linienverbreiterung

$$f_n^0(\omega) = 3/8 \lambda p R_n \Gamma_n / h (\omega_0 - \omega - i \Gamma_{eff} / (2h))^{-1}, \omega_0 = (E_B - E_0) / h$$

und für R kann man schreiben

$$R(\omega, \phi_0) = \frac{1 - \sqrt{1 + \omega_B / (\omega_0 - \omega + i \Gamma_{eff} / (2h))}}{1 + \sqrt{1 + \omega_B / (\omega_0 - \omega + i \Gamma_{eff} / (2h))}}$$

mit:

$$\begin{aligned} \omega_B &= \omega_B^i - i \omega_B^r \\ &= 3/8 \lambda^3 p / \pi p R_n \Gamma_n / h (\phi_0^2 - \psi_c^2 + 1 / (k |k_{abs}^i|)^{-1}) \end{aligned}$$

Damit wird die zeitabhängige Reflektivität nach m Reflexionen:

$$\begin{aligned} |R^m(t)|^2 &= | (2\pi)^{-1} \int e^{-i\omega t} (R(\omega, \phi_0))^m d\omega |^2 \\ &= (2\pi)^2 e^{-(\Gamma_{eff}/h + \omega_B^r)t} \left| 2 \int_{z^-}^{z^+} \omega_B^i e^{zt} / (z + \sqrt{z^2 + \omega_B^2/4})^m dz \right|^2 \\ &\quad , z \pm = \pm i\omega + (\Gamma_{eff}/h + \omega_B^r)/2 \end{aligned}$$

Das Integral ist eine inverse Laplacetransformation, und nach /41/ erhält man als Lösung:

$$|R^m(t)|^2 = t^{-2} e^{-(\Gamma_{eff}/h + \omega_B^r)t} |m J_m(\omega_B/2 t)|^2$$

Dabei ist  $J_m$  die m-te Besselfunktion.

Das Verhalten dieser Funktion sei hier kurz analysiert für den Fall verschwindender Photoabsorption, d. h.  $\omega_B^r = 0$ .

Für  $\omega_B/2 t \gg 1$  ist /42/:

$$J_m(\omega_B/2 t) \approx 2 (\pi \omega_B t)^{-1/2} \cos(\omega_B/2 t - \pi(m+1/2)/2)$$

Während für  $\omega_B/2 t \rightarrow 0$ :

$$J_m(\omega_B/2 t) \approx (\omega_B/4 t)^m / m!$$

Die Intensität entwickelt sich also bei sehr kleinen Zeiten gemäß:

$$i_r^m(t) = i_0(E_0) h (\omega_B/4)^{2m} ((m-1)!)^{-2} t^{2(m-1)} e^{-\Gamma_{eff}t/h}$$

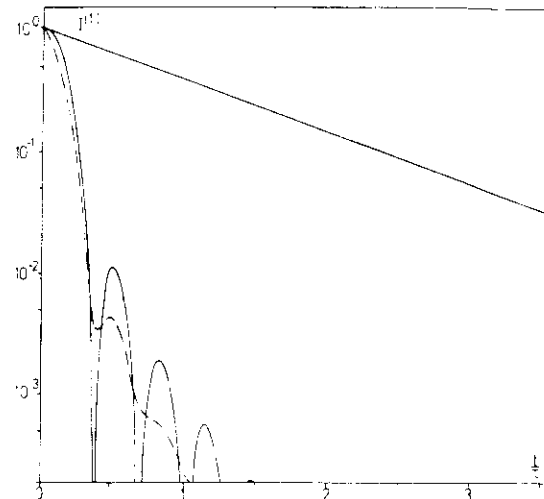


Abb. 40 a Zeitspektrum nach einer Reflexion

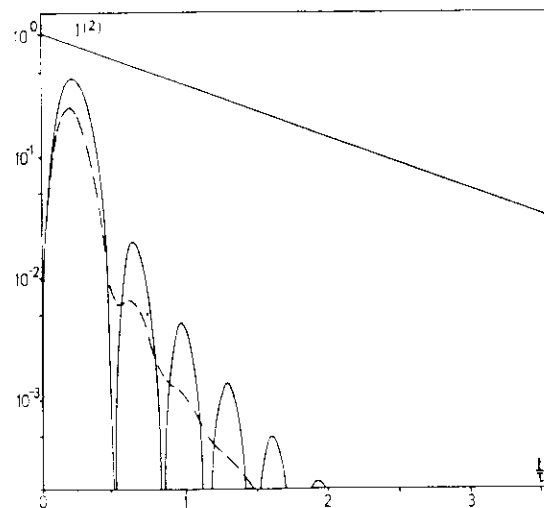


Abb. 40 b Zeitspektrum nach zwei Reflexionen

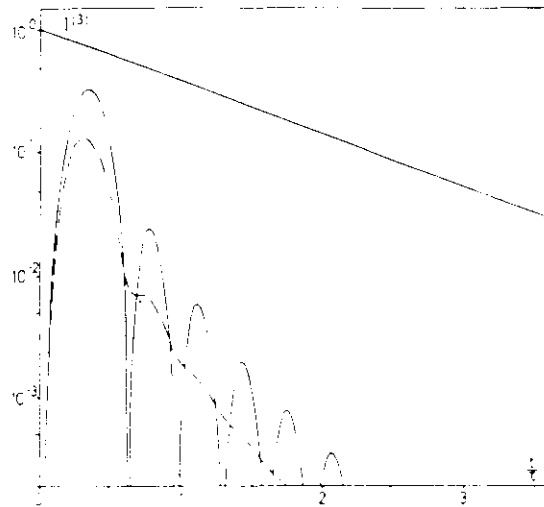


Abb. 40c Zeitspektrum nach drei Reflexionen

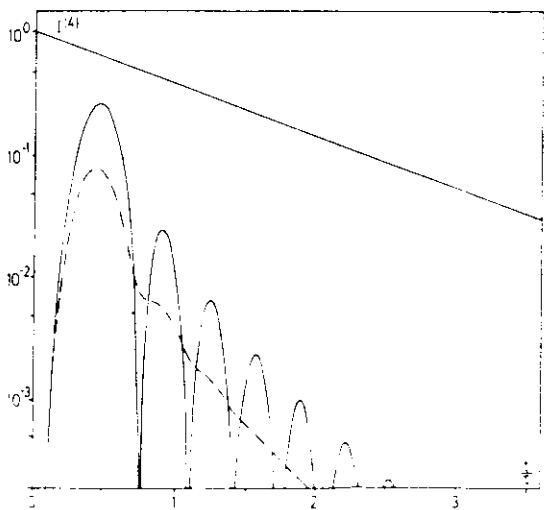


Abb. 40d Zeitspektrum nach vier Reflexionen

Wegen der "Trägheit" des Kernstreuungssystems ist die Zeitantwort gemäß  $t^{2(m-1)}$  verzögert und nur für den Fall  $m = 1$  zur Zeit  $t = 0$  von null verschieden.

Für große Zeiten wird:

$$i_r^m(t) = i_0(E_0) h 4m^2 / (\pi \omega_B) t^{-3} e^{-\Gamma_{\text{eff}} t / \hbar} \cos^2((\omega_B t - \pi(m+1/2))/2)$$

Die kohärente Streuung am Kollektiv aller Resonanzstreuer in den Spiegeln führt also zu einer mit  $t^{-3}$  beschleunigt abfallenden Intensität, der eine Modulation mit der Kreisfrequenz  $\omega_B/2$  überlagert ist. In Abbildung 40 sind für  $m = 1$  bis 4 die zeitabhängigen Intensitäten dargestellt.  $i_0(E_0)$  wurde dabei so gewählt, daß  $i_r^1(t = 0) = 1$  ist. Als Vergleichskurve ist jeweils der exponentielle Abfall mit der natürlichen Lebensdauer  $\tau = 141$  ns eingezeichnet. Für die Kernparameter und den Minimumswinkel wurden die gleichen theoretischen Werte zugrunde gelegt wie in VI A.

In diesem Fall ist  $\omega_B = 20 \Gamma / \hbar$ , und nach vier Reflexionen liegt die Hauptintensität zwischen 20 und 100 ns. Da eine inhomogene Verbreiterung der Linien über  $\Gamma_{\text{eff}}$  nur eine beschleunigte Abnahme der Intensität insgesamt bewirkt und das Maximum im wesentlichen von  $\omega_B$ , das sich auch bei den aktuellen Spiegeln nicht entscheidend ändert, festgelegt wird, ist auch für die realistischen Fälle ein ähnliches Verhalten zu erwarten.

Der Imaginärteil von  $\omega_B$ , der vor allem für  $\Phi_0 \rightarrow \Psi_c$  wichtig wird, führt über das imaginäre Argument im Cosinus zu einer Dämpfung der Oszillationen. Dieser Einfluß ist in Abbildung 40 in der unterbrochenen Linie mitberücksichtigt worden.

Die Reststreuung der Elektronen führt schließlich zu einem zusätzlichen Intensitätsmaximum bei  $t = 0$ .

### C) Konzeption eines resonanzselektiven schnellen Detektors

Über die mittlere elektronische und resonante Reflektivität läßt sich die zu erwartende Zahl der entsprechenden Quanten abschätzen. Dabei bleibt auch nach einer vierfachen Reflexion an den bisher vorgestellten Spiegeln die nichtresonante Intensität um einige Größenordnungen größer.

Ein zeitselektiver Detektor muß sich nach dem oben Gesagten in 20 bis 30 ns von dieser unerwünschten prompten Strahlung erholen, und zwar sollte in

dieser Zeit das Nachweissignal auf mindestens  $10^{-3}$  abgeklungen sein. Von NaJ- und auch von den schnellen Plastiksintillatoren ist bekannt, daß in ihren Abklingenspektren zumindest in der Größenordnung von Prozent auch Komponenten mit sehr viel längeren Abklingzeiten (bis zu  $\mu\text{s}$ ) vertreten sind. Weiteren verzögerten Untergrund liefern Nachpulse der nötigen Multiplier (/43;).

Multi-Channel-Plates (MCP), in denen die Verstärkung von Primärelektronen in einem Kapillarröhrensystem, über das eine Hochspannung kontinuierlich abfällt, erfolgt, haben den Vorteil hoher Zeitauflösung, ohne verzögerten Untergrund auf der Verstärkungsstrecke zu erzeugen. Sie wurden deshalb bereits bei Synchrotronexperimenten erfolgreich eingesetzt. /44/ erreichte bei Messungen im VUV-Bereich Zeitaufösungen unter 5 ns und ein Verhältnis von Puls- zu Untergrundsignal bis zu  $10^{-3}$  pro Kanal. /4/ berichtet von Unterdrückungsfaktoren bis zu  $10^{-6}$  für die Konversionselektronen des  $^{57}\text{Fe}$ .

MCPs sollten sich also für den Nachweis der verzögerten resonanzgestreuten Intensität besonders eignen. Allerdings ist ihr Ansprechvermögen für die 14,4 keV-Quanten sehr gering, so daß ein Konverter vorgeschaltet werden muß. Dazu eignet sich in diesem Fall die Konversion am  $^{57}\text{Fe}$  selbst. Wegen des großen Konversionsfaktors  $\alpha = 8,21$  werden für mehr als 90 % der resonant absorbierten  $\gamma$ -Quanten 7,4 keV Konversionselektronen mit einer Zeitverzögerung in der Größenordnung der Lebensdauer inkohärent reemittiert. Als konkurrierender elektronenerzeugender Prozeß liefert der Photoeffekt Untergrundelektronen. Die beteiligten Absorptionswirkungsquerschnitte sind  $\sigma_{\text{ph}} = 5,5 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  und  $\sigma_{\text{res}} = 2,6 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$  (unaufgespaltene Linie). Dem entsprechen Absorptionslängen von  $l_{\text{abs}}^{\text{ph}} = 2,3 \cdot 10^5 \text{ \AA}$  und  $l_{\text{abs}}^{\text{res}} = 4,9 \cdot 10^2 \text{ \AA}$ . Die mittlere Reichweite der erzeugten Elektronen in Eisen beträgt ungefähr  $3 \cdot 10^3 \text{ \AA}$ .

Bei senkrechtem Einfall auf eine  $^{57}\text{Fe}$ -Stainless-Steel-Folie wird also der gesamte resonante Anteil der Strahlung in den ersten 3000  $\text{\AA}$  in Elektronen konvertiert, und da die Reemission in  $4\pi$  erfolgt, kann fast die Hälfte dieser Elektronen die Folie wieder verlassen. Die Zahl der in gleicher Tiefe erzeugten Photoeffektelektronen ist wegen des kleineren Wirkungsquerschnittes sehr viel geringer. Sie werden in größerer Zahl erst tiefer in der Folie erzeugt und können dann nicht mehr austreten. Es ergibt sich also eine wirksame Anhebung des Nachweises der resonanten Photonen über den nichtresonanten Untergrund

Dieser Konversionsunterdrückungsfaktor wird durch zwei Faktoren verringert.

i) Die Geometrie der Anordnung Folie-MCP fordert, will man nicht einen Teil des nutzbaren Raumwinkels verlieren oder den Primärstrahl direkt durch den MCP schicken, einen Einfallswinkel auf die Folie zwischen  $40^\circ$  und  $60^\circ$ . Dies verlegt das Gebiet der Elektronenerzeugung dichter unter die Austrittsfläche. Davon profitieren die Photoelektronen überproportional, so daß der Unterdrückungsfaktor kleiner wird.

ii) Die Linien in den Folien sind in der Regel leicht verbreitert, was zu einer Reduzierung des Absorptionswirkungsquerschnittes in der Resonanz führt. Dadurch wird das Verhältnis der Absorptionslängen ungünstiger und damit die Unterdrückung verringert.

Unter den vereinfachenden Annahmen einer stufenförmigen Reichweitenfunktion und einer isotropen Strahlungscharakteristik für die Elektronen läßt sich bei gleicher Primärintensität das Verhältnis der erzeugten Elektronen im resonanten und nicht resonanten Fall abschätzen. Für einen Einfallswinkel um  $60^\circ$  und eine Linienbreite von  $2\Gamma$  erhält man immerhin noch einen Faktor 100.

Geht man davon aus, daß die prompte Strahlung in den ersten 30 ns nach dem Bunch nachgewiesen wird und die resonante Strahlung unter Berücksichtigung der zusätzlichen Verzögerung durch den Konversionsprozeß im Bereich von 30 bis 330 ns analysiert wird, so wird der gesamte Unterdrückungsfaktor bezüglich dieser Zeitintervalle mindestens  $10^{-4}$ .

Die gesamte Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors (Stahlquerschnitt  $1 \times 40 \text{ mm}^2$ , Durchmesser MCP 25 mm) liegt bei  $10^{-1}$ .

Konstruktiv unterscheidet sich ein solcher Detektor in zweierlei Hinsicht von einfachen Szintillator-Multiplier-Anordnungen: Der Betrieb des MCP als auch die ungestörte Ausbreitung der erzeugten Elektronen erfordern ein Vakuum unter  $10^{-6}$  torr. Dementsprechend ist ein abpumpbares Gehäuse vorzusehen. Zum anderen muß dafür gesorgt werden, daß die Resonanzenergie der Strahlung und der Konversionsfolie übereinstimmen.

Dazu müssen Folie und MCP auf einen Mößbauerantrieb montiert werden. Eine schematische Skizze eines solchen Aufbaus zeigt Abbildung 41.

Um nicht zu viel Primärintensität zu verlieren, muß der Antrieb möglichst lange konstant mit der Resonanzgeschwindigkeit gefahren werden. Der



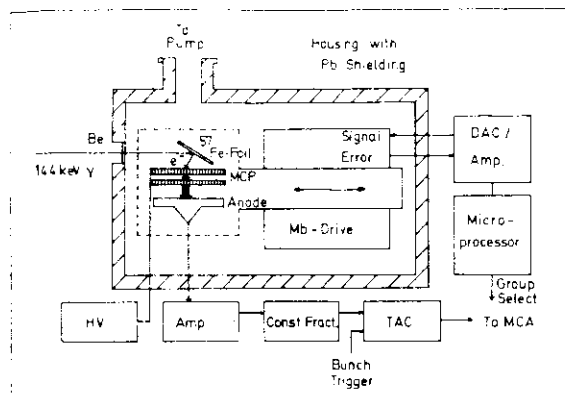


Abb. 41 Schematische Darstellung des resonanzselektiven Detektors

nötige Rücklauf kann bei höheren Geschwindigkeiten außerhalb der Resonanz erfolgen. Die in dieser Zeit gemessene Intensität kann als direkte Referenz des nichtresonanten Strahlungsanteils genutzt werden.

Ein entsprechendes Steuerungsprogramm für den Antrieb, das gleichzeitig die Zählraten innerhalb und außerhalb der Resonanz in verschiedene Gruppen eines Vielkanals leitet, kann in einen Mikroprozessor implementiert werden.

Ein solcher resonanzselektiver Detektor befindet sich augenblicklich in der Aufbauphase.

## VIII. Ausblick

In der neuen Halle des HASYLAB bei DORIS, die im Laufe des Jahres 1981 fertiggestellt wird, wird ein Experiment zur Monochromatisierung der Synchrotronstrahlung mit Hilfe der kohärenten Kernresonanzstreuung vorbereitet. Der Abstand des Experiments vom Entstehungsort der Strahlung wird rund 20 m betragen.

Die für diese Zwecke allein einsetzbaren vergüteten Spiegel müssen bei Einfallswinkeln um 4,5 mrad betrieben werden; bei der geplanten Länge dieser Spiegel von 20 cm bedeutet dies eine vertikale Akzeptanz von fast 1 mm, d. h. 0,05 mrad. Die Breite der Spiegel von 4 cm begrenzt die horizontale Akzeptanz auf 2 mrad. (Die gewählte Größe der Spiegel erfordert bei einer Bedampfung mit  $1000 \text{ \AA}$   $^{57}\text{Fe}$  einen Materialeinsatz unter 10 mg pro Spiegel. Allerdings muß im Verdampfungssofen ungefähr die zehnfache Menge zur Verfügung stehen. Auch dies ist bei Preisen um 10 Dollar/mg noch akzeptabel.)

Legt man Single-Bunch-Betrieb bei 5 GeV und realistische 20 mA zugrunde, bedeutet diese Geometrie eine nutzbare Primärintensität von  $N_0 = 10^{11}$  Photonen/(eV s).

Betrachtet man nun für die beiden Spiegel A und B die günstigsten Fälle, deren resonante Reflektivität (im Mittel über  $2 \Gamma$ ) noch oberhalb von 25 % liegt, so ergeben sich nach den Tabellen 8 und 9 vier Möglichkeiten.

- 1) A b:  $r_e = 0,89 \%$ ;  $r_r = 26 \%$
- 2) A c:  $r_e = 1,46 \%$ ;  $r_r = 33 \%$
- 3) B c:  $r_e = 0,61 \%$ ;  $r_r = 39 \%$
- 4) B d:  $r_e = 1,07 \%$ ;  $r_r = 47 \%$

Für diese Fälle können die Intensitätsverhältnisse nach z. B. 3 oder 4 Reflexionen abgeschätzt werden. Als weitere bestimmende Größen werden dazu herangezogen:

- T = 0,25 Die Transmission durch den experimentellen Aufbau vor den vergüteten Spiegeln
- B = 10 eV Die Bandbreite des Vormonochromators
- P = 0,5 Der Anteil der betrachteten linkszirkularen Polarisation
- $\epsilon = 0,1$  Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors
- $b = 10^{-8}$  eV Dessen Resonanzbandbreite

$D = 10^{-4}$  Dessen Unterdrückungsfaktor bezogen auf die Zeitintervalle  $t = 30$  und  $30 \cdot 330$  ns

$u = 0,15/s$  Die Untergrundzählrate in diesen 300 ns

Die Zahl der nach  $n$  Reflexionen in der Zeit  $t$  gesammelten nichtresonanten Ereignisse ist dann:

$$N_n^m = (N_0 T B r_e^{n+1} D) + u t t = (0,25 \cdot 10^{-7} r_0^{n+1} + 0,15) t/s$$

Und für die resonanten Ereignisse gilt:

$$N_r^m = (N_0 T P r_r^{n+1} B) t = (0,125 \cdot 10^{-2} r_r^{n+1}) t/s$$

Tabelle 10 stellt für die Fälle 1 bis 4 die erwarteten Ereigniszahlen pro Zeiteinheit für drei und vier Reflexionen gegenüber. Außerdem ist angegeben die jeweilige Zeit  $t_n^{10}$ , die gemessen werden muß, wenn man in 10 Zeitintervallen  $\Delta t = 30$  ns nach dem prompten Puls den resonanten Anteil im Mittel außerhalb des zehnfachen Fehlers des nichtresonanten Untergrundes nachweisen will. Vorausgesetzt wird dabei, daß der Antrieb im Detektor die Hälfte der Zeit außerhalb der Resonanz läuft.

	$N_n^3/t$	$N_r^3/t$	$t_3^{10}$	$N_n^4/t$	$N_r^4/t$	$t_4^{10}$
1	$(1,43 \pm 0,15)/s$	0,22/s	$6,4 \cdot 10^4$ s	$(1,19 \cdot 10^{-2} \pm 0,15)/s$	0,06/s	$9,8 \cdot 10^4$ s
2	$(7,78 \pm 0,15)/s$	0,45/s	$7,8 \cdot 10^4$ s	$(1,14 \cdot 10^{-1} \pm 0,15)/s$	0,15/s	$1,5 \cdot 10^4$ s
3	$(0,57 \pm 0,15)/s$	0,74/s	$2,6 \cdot 10^3$ s	$(3,46 \cdot 10^{-3} \pm 0,15)/s$	0,29/s	$3,6 \cdot 10^3$ s
4	$(3,06 \pm 0,15)/s$	1,30/s	$3,8 \cdot 10^3$ s	$(3,28 \cdot 10^{-2} \pm 0,15)/s$	0,61/s	$1,0 \cdot 10^3$ s

Tab. 10 Zählraten und Meßzeiten nach 3 und 4 Reflexionen

Es zeigt sich, daß unter diesen Meßbedingungen nur Spiegel der gleichen Güte wie B vernünftige Meßzeiten ermöglichen (die Strahlenlebensdauer liegt üblicherweise in der Größenordnung  $10^4$  s). Weiter erkennt man, daß im Hinblick auf minimale Meßzeiten, wegen des nicht zu vermeidenden allgemeinen Untergrundes, nicht unbedingt die Konfiguration mit dem größten Unterdrückungsfaktor optimal ist, sondern daß vielmehr ein Kompromiß zwischen hohem Unterdrückungsfaktor und großer Resonanzreflektivität vorzuziehen ist.

Betrachtet man hingegen "integrale" Messungen, bei denen nur die Zählrate in den verzögerten 300 ns insgesamt betrachtet wird (was die nötige Meßzeit um einen Faktor 10 verringert), so werden selbst Spiegel der Art B in Konfiguration 2 diskutabel.

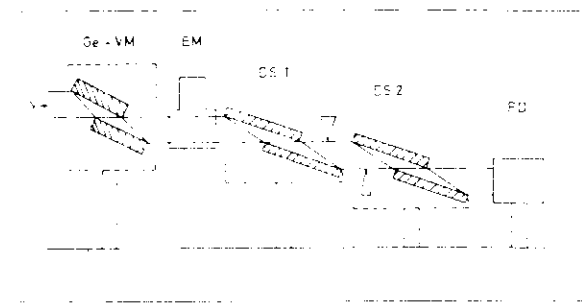


Abb. 42 Zukünftiges Experiment bei DORIS

Insgesamt ergeben sich also gute Aussichten für die zukünftigen Experimente. Abbildung 42 gibt eine schematische Darstellung des verfolgten Konzepts:

Die Bandbreite der Strahlung wird in einem 111 Germanium Vormonochromator (Ge-VM) auf 10 eV eingegrenzt. Die Ausführung dieses Monochromators als Channel-Cut-Version mit leicht geneigter Schnittfläche vergrößert dessen Akzeptanz und vereinfacht die Justierung erheblich. Es folgt der bekannte Energiesensordetektor (EM), hinter dem die Strahlung auf die vier vergüteten Spiegel trifft.

Sie sind in zwei Einheiten à zwei Spiegeln (DS) zusammengefaßt, was wiederum die Justierung erleichtert und auch in einfacher Weise die Montage der Helmholtz-Spulen zur Ausrichtung des Hyperfeinfeldes ermöglicht. Außerdem läßt sich im Zwischenraum zwischen den Einheiten eventuelle Streustrahlung mit Bleistopps abschirmen. Jede Spiegeleinheit ist bezüglich Höhe und Einfallswinkel einstellbar, und auch der Abstand der Spiegel zueinander ist justierbar.

Am Ende wird die resonante Strahlung in dem vorgestellten selektiven Detektor (RD) nachgewiesen.

An der Realisierung dieser Apparatur wird gearbeitet.

## IX. Zusammenfassung

Zur Monochromatisierung der Synchrotronstrahlung von DORIS auf Mößbauer-niveaubreiten sind Systeme zur kohärenten Kernresonanzstreuung mit Dimensionen von Quadratcentimetern nötig. Für  $^{57}\text{Fe}$  limitiert dies aus technischen und finanziellen Gründen die möglichen Monochromatoren auf solche, die auf dünnen aufgedampften Eisenschichten basieren. Zwei Monochromatisierungsprinzipien standen zur Diskussion.

Resonante Braggstreuung an dünnen  $^{57}\text{Fe}$ -Einkristallen.

Bei entsprechender Kristalldicke findet kaum elektronische Streuung statt. Dank der größeren Kernstreuung bleibt die Resonanzstreuung in der Größenordnung 25 %. Reine kohärente Kernstreuung wäre also realisierbar, aber es gelang nicht, die Eiseneinkristalle in der nötigen Perfektion herzustellen.

Totalreflexion bei streifendem Einfall an vergüteten Spiegeln.

Wegen der größeren Streulänge dominiert in der Nähe des kritischen Winkels die resonante Strahlung über die elektronische. Diese Dominanz kann vergrößert werden, wenn man mittels entsprechender Vergütung der Oberflächen die elektronische Reflektivität unterdrückt. Für Ge-vergütete Eisen-spiegel war im optimalen Fall eine elektronische Restreflektivität um  $4 \cdot 10^{-4}$  zu erwarten. Gemessen wurde nur eine Reduktion der Reflektivität um Faktoren der Größenordnung 5 auf Werte bei  $10^{-2}$ . Diese Abweichung von der theoretischen Vorhersage ist im wesentlichen eine Folge der stark variierenden Dicke der Vergütung.

Trotz dieser Variation und trotz einer inhomogenen Verbreiterung der Resonanzniveaus konnte an vergüteten  $^{57}\text{Fe}$ -Spiegeln Kernstreuung nachgewiesen werden, die bis zu Faktoren 60 über der elektronischen lag. Mit vier Reflexionen an derartigen Spiegeln ist zu erwarten, daß aus der Synchrotronstrahlung ein linkszirkular polarisiertes Mößbauerband zu selektieren ist, dessen nutzbare Intensität mit 0,6 Photonen/s dreifach über dem nichtresonanten Untergrund liegt.

## X. Literaturverzeichnis

- /1/ S. L. Ruby: Jour. de Phys. Coll. 35, C6 209 (1974)
- /2/ Programm von R. Klucker, vorgestellt in: Synchrotronstrahlung bei DESY, Hrsg. E. E. Koch, C. Kunz (1977)
- /3/ European Synchrotron Facility The Feasibility Study, Hrsg. Y. Farge European Science Foundation, Strasbourg (1979)
- /4/ R. L. Cohen, G. L. Miller, K. W. West: Phys. Rev. Lett. 41 381 (1978)
- /5/ G. V. Smirnov, V. V. Skiyarevskii, R. A. Voskanyan, A. N. Artem'ev: ZhETF 9, 2 123 (1969)
- /6/ R. M. Mirzababaev, G. V. Smirnov, V. V. Skiyarevskii, A. N. Artem'ev, A. N. Izrailenko, V. Babkov: Phys. Rev. Lett. 37A 441 (1971)
- /7/ L. D. Landau, E. M. Lifschitz: Lehrbuch der theoretischen Physik IVb Akademie Verlag, Berlin (1973) S. 4
- /8/ Wie /7/, S. 5
- /9/ G. C. Wick: Phys. Rev. 80 286 (1950)
- /10/ A. J. Achieser, W. B. Berestezki. Quantenelektrodynamik Harri Deutsch, Frankfurt/Main (1962) § 17
- /11/ W. H. Zachariasen: Theory of X-Ray Diffraction in Crystals John Wiley & Sons, New York (1954) Chap. III
- /12/ Wie /10/, § 27
- /13/ M. E. Rose: Elementary Theory of Angular Momentum John Wiley & Sons (1957) S. 85
- /14/ International Tables for X-Ray Crystallography III Hrsg. C. H. Macgillavry, G. D. Rieck Kynoch Press, Birmingham (1968)

- /15/ D. L. Smith: Empirical Formula for Interpolation of Tabulated Photon Photoelectric Cross-Sections  
ANL-Report 7796, Argonne, Illinois (1971)
- /16/ A. Messiah: Quantum Mechanics I  
North-Holland, Amsterdam (1970)  
S. 449
- /17/ z. B.: A. Abragam: L'effet Mössbauer  
Gordon and Birch, New York (1964)
- /18/ Mössbauer Data Index: Hrsg. J. G. Stevens, V. E. Stevens,  
P. T. Deason Jr.  
IFI/Plenum (1975)
- /19/ P. P. Ewald: Physik. Zeitschrift 14 465 (1913)
- /20/ M. von Laue: Röntgenstrahlinterferenzen  
Becker und Erler, Leipzig (1941)  
Kap. IV
- /21/ A. M. Afanas'ev, Y. Kagan: Sov. Phys. JEPT 21 215 (1965)
- /22/ Y. Kagan, A. M. Afanas'ev, I. P. Perstnev:  
Sov. Phys. JEPT 27 819 (1968)
- /23/ J. P. Hannon, G. T. Trammell: Phys. Rev. 169,2 315 (1968)
- /24/ J. P. Hannon, G. T. Trammell: Phys. Rev. 186,2 306 (1969)
- /25/ O. Haase: Z. Naturforsch. 11a 862 (1956)
- /26/ R. Ciuti, I. Devenyi, P. Escudier, R. Montinory, A. Yelon:  
C. R. Acad. Sci. 260 6849 (1965)
- /27/ H. S. Snyman, G. H. Olsen: J. Appl. Phys. 44 889 (1973)
- /28/ E. F. Wassermann, J. P. Jablonski: Surface Sci. 22 69 (1970)
- /29/ P. Lilienkamp: Diplomarbeit, Inst. f. Ang. Phys.  
Universität Hamburg (1980)
- /30/ R. Ruffer: Diplomarbeit, II. Inst. f. Exp. Phys.  
Universität Hamburg (1979)
- /31/ U. Bonse, E. TeKaas, E. Kappler:  
Journ. of Sci. Inst. 42 631 (1965)
- /32/ H. Fehmer, W. Uelhoff:  
Journ. of Sci. Inst. 2,2 771 (1969)
- /33/ CRC Handbook of Chemistry and Physics, 59<sup>th</sup> Ed.  
Hrsg. R. C. Weast  
CRC Press, West Palm Beach (1978)

- /34/ H. Pepperling: Staatsexamensarbeit, II. Inst. f. Exp. Phys.  
Universität Hamburg (1980)
- /35/ J. G. Goodwin, G. Parravano:  
Journ. Vac. Sci. Technol. 14,5 1157 (1977)
- /36/ R. P. Haelbich: Dissertation, II. Inst. f. Exp. Phys.  
Universität Hamburg (1980)
- /37/ G. Martens, P. Rabe:  
wird veröffentl. in Phys. stat. Sol. (a) 58,1 (1980)
- /38/ P. Beckmann, A. Spizzichino:  
The Scattering of Electromagnetic Waves from Rough Surfaces  
Pergamon Press, New York (1963)
- /39/ S. Bernstein, E. C. Campbell:  
Phys. Rev. 132,4 1652 (1963)
- /40/ J. P. Hannon, G. T. Trammell, N. Hung, M. Mueller,  
H. Winkler, E. Gerdau, R. Ruffer:  
wird veröffentl. in Phys. Rev.
- /41/ Tables of Integral Transforms I  
Hrsg. A. Erdelyi  
MacGraw-Hill, New York (1954)  
S. 237
- /42/ Handbook of Mathematical Functions  
Hrsg. M. Abramowitz  
Dover Publications, New York (1965)  
§ 9
- /43/ G. E. Morton, H. M. Smith, R. Wassermann:  
IEEE Transaction on Nucl. Sci. (1967) 443
- /44/ U. Hahn: Dissertation, II. Inst. f. Exp. Phys.  
Universität Hamburg (1978)

Diese Arbeit wurde in der Abteilung Kernmomente des II. Instituts für Experimentalphysik unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. E. Gerdau durchgeführt. Ihm gilt auch besonderer Dank für seine stete Förderung dieses Vorhabens und für sein Engagement bei Vorbereitung und Durchführung der Messungen.

Herrn Prof. Dr. J. P. Hannon bin ich zu großem Dank verpflichtet für die fruchtbaren Diskussionen anlässlich seines Aufenthaltes in Hamburg, die zur Klärung theoretischer Fragen entscheidend beitrugen und vor allem den Fortschritt bei der Arbeit an den vergüteten Spiegeln möglich machten.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. M. Harsdorff und seinen Mitarbeitern, Herrn P. Lilienkamp und Herrn P. M. Klews, die mit ihrer unermüdlichen Arbeit zur Herstellung der dünnen Aufdampfschichten die Grundlage für die erfolgreichen Experimente legten.

Nur die stetige Hilfsbereitschaft und die nie erlahmende Unterstützung in Wort und Tat von Herrn Dr. H. Winkler und Herrn R. Ruffer haben es mir ermöglicht, die im Laufe der Zeit aufgetretenen Hindernisse zu überwinden.

Konstruktive Probleme aller Größenordnungen konnten nur dank der Hilfe von Herrn Trautsch, Frau Soltau und Herrn Giesenberg aus der Konstruktion und dank der mechanischen Werkstatt unter der Leitung von Herrn Weber gelöst werden.

Frau Lohl habe ich für die Hilfe beim Anfertigen der Zeichnungen zu danken.

Nicht zuletzt aber möchte ich allen Mitgliedern der Abteilung Kernmomente für die fruchtbare und angenehme Zusammenarbeit danken.

Diese Arbeit wurde im Rahmen des Projekts Nr. 05 138 GuP/Gul vom Bundesministerium für Forschung und Technologie gefördert.

