

Казанский государственный университет

Физический факультет
Кафедра физики твердого тела

**Ядерно-физические
методы исследования**

Ивойлов Н.Г.

Мессбауэровская спектроскопия

Конспект лекций

Казань 2003

Печатается по решению Редакционно-издательского совета физического факультета и поддержана грантом BRHE (REC 007)

УДК 539.172.3:539.2

Ивойлов Н.Г. Мессбауэровская спектроскопия. Конспект лекций для студентов физического факультета по специальности и направлению «Физика». Казань, 2003, 93 с.

Изложены основы ядерной гамма-резонансной спектроскопии. Рассмотрен как традиционный метод поглощения, так и метод регистрации мессбауэровских спектров по рассеянному излучению, эффективно используемый для изучения тонких пленок и поверхностей твердых тел. Представлен конспект лекций по курсу «Техника ЯГР-спектроскопии», читаемых автором в течение ряда лет на физическом факультете КГУ.

Рецензент: Старший научный сотрудник лаборатории нелинейной оптики КФТИ, канд. физ-мат. наук,
Манапов Р.А.

Глава 1

§1. Общие замечания

Явление резонанса γ -лучей на атомных ядрах состоит в резком возрастании вероятности поглощения или рассеяния γ -квантов с энергией, соответствующей возбуждению ядерных переходов. Попытки наблюдать это явление, аналогичное по своей природе явлению атомной резонансной флуоресценции, предпринимались еще в 1929 г. (Кан), но впервые положительные результаты удалось получить только в 1950 г. в работе Муна. Причины, по которым ранние эксперименты не увенчались успехом, связаны с потерей энергии на отдачу ядра, вследствие чего энергия γ -лучей, испускаемых в ядерных переходах, оказывалась немного меньше необходимой для возбуждения этих же переходов. На эту особенность, отличающую явление ядерного γ -резонанса от атомной флуоресценции и затрудняющую его наблюдение, впервые обратили внимание И.Я. Барит и М.И. Подгорецкий в 1946 г.

В течение пятидесятих годов был выполнен ряд работ, в которых авторы, используя тот или иной метод компенсации потерь на отдачу, изучали резонансное рассеяние или поглощение γ -квантов с источниками как в твердом, так и в жидком или газообразном состояниях. В этих экспериментах было обнаружено само явление γ -резонанса, измерены времена жизни возбужденных состояний некоторых ядер. Однако трудности, обусловленные малой величиной эффективного сечения ядерного γ -резонансного процесса по сравнению с сечением других процессов взаимодействия γ -лучей с веществом, делают такой метод недостаточно удобным.

Наиболее важным результатом этих исследований явилось открытие в 1958 г. Рудольфом Мессбауэром явления испускания и поглощения γ -лучей без потери энергии на отдачу, если ядра связаны в кристаллической решетке. Это открытие сделало возможным при опреде-

ленных условиях легко наблюдать резонанс γ -лучей в кристаллах, и вызвало исключительно большой интерес у физиков.

Уникальные возможности метода γ -резонанса обусловлены остротой этого резонанса, значительно большей, чем в случае других резонансных явлений. Исключительно высокая чувствительность γ -резонанса к малым изменениям энергии была убедительно продемонстрирована в опытах Паунда и Ребки (1960), наблюдавших в земных условиях гравитационное красное смещение частоты γ -кванта, предсказываемое теорией относительности. В этих опытах была достигнута неизвестная ранее в физике рекордная чувствительность в относительных измерениях энергии, составившая поразительно малую величину ($\sim 10^{-15}$). Зачастую метод γ -резонанса позволяет обнаружить изменения энергии γ -линий, вызванные взаимодействием ядра с внеядерными электрическими и магнитными полями, создаваемыми в кристаллах электронами и окружающими ионами. Это взаимодействие, известное из сверхтонкой структуры оптических спектров и других явлений, приводит к сверхтонкому расщеплению уровней энергии ядра, которое непосредственно проявляется в спектрах резонансного поглощения γ -лучей. Такие спектры снимаются на γ -резонансных спектрометрах, представляющих собой простые установки, в которых измеряется поглощение в зависимости от относительной скорости источника и поглотителя.

До открытия эффекта Мессбауэра считалось совершенно безнадежным когда-либо наблюдать сверхтонкую структуру γ -линий, так как разрешающая способность лучших современных γ -спектрометров ($\sim 10^{-4} - 10^{-5}$) на много порядков меньше необходимого для этой цели разрешения ($\sim 10^{-12}$). Высокое энергетическое разрешение, характерное для γ -резонансных экспериментов, делает возможным такие наблюдения и позволяет измерять величину магнитного дипольного и электрического квадрупольного взаимодействия, а также величину сдвига линий, вызванного скалярным кулоновским взаимодействием (изомерный химический сдвиг). Каждая из этих трех величин содержит произведение двух факторов, один из которых определяется ядерным параметром, а другой зависит от свойств среды. Таким образом могут быть найдены

упомянутые ядерные характеристики, но более важными являются получаемые отсюда данные об эффективных магнитных полях, о градиентах электрических полей, действующих на ядра, и о величине электронной плотности в области ядра. Особенно перспективными оказались исследования внутренних магнитных полей в магнитно-упорядоченных системах, позволяющие получить ценную информацию о природе ферро-, ферри- и антиферромагнетизма. В развитии этого направления важную роль сыграло счастливое обстоятельство, что среди изотопов железа, являющегося ферромагнитным элементом, содержится наиболее удобный для γ -резонансных экспериментов изотоп Fe^{57} . Кроме того, такие эксперименты также могут быть проведены с магнитными атомами в области редких земель.

Не менее важные сведения были получены из исследований квадрупольных расщеплений и изомерных химических сдвигов. Эти работы послужили основанием для дальнейших применений, в том числе в различных областях химии, и в частности для аналитических целей.

Помимо перечисленных сведений, получаемых из вида спектров и положения резонансных линий, измерения интенсивностей линий открывают еще возможность изучения динамических свойств кристаллической решетки, зависящих от спектра собственных частот колебаний атомов кристалла (фононный спектр). Принципиальная возможность получения методом γ -резонанса частот фононов встречает большие трудности и не реализована. Измеряемая в эксперименте величина вероятности безотдачного процесса, определяемая фактором Дебая-Валлера, дает только усредненные характеристики спектра частот. Тем не менее в γ -резонансных экспериментах удалось установить ряд важных особенностей этих спектров и, в частности, получить некоторые сведения о поведении примесных атомов в различных матрицах или поверхности кристаллов и обнаружить ряд эффектов, зависящих от динамических свойств кристаллической решетки.

Помимо отмеченных выше основных применений, в ряде работ исследовались возможности метода γ -резонанса для изучения диффузии в жидкостях, адсорбции на поверхностях, радиационных эффектов

в твердых телах, для изучения растворов, аморфных сред и стекол и многих других проблем.

Наряду с широко применяемым методом поглощения в последнее время развивался также и метод резонансного рассеяния. Такой метод позволяет получить информацию, которая в ряде случаев недоступна методу поглощения. Особый интерес представляет изучение когерентных эффектов, возникающих при рассеянии γ -лучей.

§2. Взаимодействие γ -лучей с веществом

Прежде чем приступить к изложению основного материала, целесообразно напомнить главные процессы, протекающие при взаимодействием γ -лучей с веществом и конкурирующие с явлением ядерного γ -резонанса. Прохождение γ -лучей через вещество приводит к ослаблению падающего пучка за счет процессов поглощения и рассеяния квантов. Для узкого монохроматического пучка это ослабление характеризуется экспоненциальной зависимостью, так что за поглотителем толщиной X интенсивность пучка $J(X)$ будет определяться выражением

$$J(X) = J(0) \cdot e^{-\mu X}, \quad (1.1)$$

где $J(0)$ - интенсивность падающего пучка. Вклад в коэффициент ослабления μ дают различные процессы взаимодействия γ -лучей с электронами и ядрами атомов. Толщина X может быть выражена в $см$, $г/см^2$, числом атомов или электронов на $1 см^2$, а μ соответственно выражается в $1/см$, $см^2/атом$ или $см^2/электрон$.

При не очень больших энергиях (ниже порога ядерного фотоэффекта) основную роль играют процессы, обусловленные атомным фотоэффектом, комптоновским рассеянием на свободных электронах и образованием в электрическом поле ядра или электрона пары частиц электрон-позитрон. При малых энергиях существенную роль играет релеевское рассеяние на связанных электронах атома и, если выполнены определенные условия, может также проявиться интересное нас резонансное поглощение. Кроме того, существуют различного вида процессы рассеяния γ -квантов на ядре. В рассматриваемой области энергий

можно указать три таких процесса: резонансное рассеяние, томсоновское рассеяние, в котором γ -квант приводит в движение ядро как целое, и упругое рассеяние в потенциальном поле ядра (дельбрюковское рассеяние). Каждый из процессов поглощения (фотоэффект, образование электронных пар и др.) связан с соответствующими процессами рассеяния дисперсионными соотношениями. Фотоэлектрическое поглощение связано с релеевским когерентным рассеянием, фотоядерное поглощение связано с ядерным резонансным и ядерным томсоновским рассеянием, а процесс образования пар – с дельбрюковским рассеянием в кулоновском поле ядра.

Перечисленные виды взаимодействия происходят независимо друг от друга, поэтому, если вероятность каждого из взаимодействий характеризовать сечением σ_i , рассчитанным на один атом, то полное сечение поглощения или рассеяния на один атом σ представляет собой сумму парциальных сечений

$$\sigma = \sum \sigma_i ; \quad (1.2)$$

и если поглотитель содержит в $1 \text{ см}^3 N$ атомов, то полный коэффициент поглощения будет

$$\mu = N\sigma. \quad (1.3)$$

Сечение каждого из указанных процессов характеризуется определенной зависимостью от энергии γ -кванта и от поглощающего вещества. Фотоэлектрическое поглощение уменьшается с ростом энергии и резко возрастает с зарядом ядра Z ($\sim Z^5$). Этот процесс преобладает при энергиях до 500 кэВ. Релеевское рассеяние, существенное в этой области энергий, в основном направлено вперед. При малых углах сечение этого рассеяния меняется как Z^2 , а при больших углах – как Z^3 . В интересующих нас экспериментах важную роль играет также комптоновское рассеяние, которое становится преобладающим при энергии $\sim 1 \text{ МэВ}$. Сечения для томсоновского $\sigma_{\text{томс}}$ и потенциального (дельбрюковского) рассеяния $\sigma_{\text{пот}}$ сравнительно малы: $\sigma_{\text{томс}} = 2.0 \times 10^{-31} Z^4/A^2 \text{ барн}$ (A – массовое число ядра), а максимальное значение $\sigma_{\text{пот}} \approx 10^{-30} \div 10^{-29} \text{ барн}$ дости-

гается при энергии m_0c^2 . Вкладом этих процессов в ослабление пучка можно пренебречь. При определенных условиях эти процессы можно наблюдать в рассеянном пучке. В отличие от перечисленных эффектов, ядерный γ -резонансный процесс дает существенный вклад в поглощение или рассеяние только в очень узкой резонансной области энергий.

§3. Форма линии испускания

В опытах по γ -резонансу источниками излучения являются радиоактивные ядра. Иногда можно использовать излучение, возбуждаемое в ядерной реакции. Ядро атома, состоящее из некоторого числа протонов и нейтронов, представляет собой квантовомеханическую систему, которая может находиться в различных стационарных состояниях с определенным значением энергии W , полным моментом количества движения I , называемым спином, и четностью волновой функции π . Помимо этих физических величин, являющихся интегралами движения и характеризующихся квантовыми числами, ядро обладает еще рядом других свойств, определяющих его поведение в тех или иных физических процессах. Каждое состояние может обладать своим магнитным μ и квадрупольным Q моментами и отличается определенным распределением зарядов $\rho(\mathbf{r})$ и массы $m(\mathbf{r})$.

Стационарные состояния с энергией, большей энергии основного состояния ядра, называемые возбужденными состояниями ядра, не являются стабильными: такие возбужденные ядра спонтанно могут переходить в нижележащие состояния. При этом, если уровень энергии возбуждения ниже энергии диссоциации ядра, т.е. вылет нуклонов невозможен, переход в нижележащее состояние в основном осуществляется путем испускания γ -кванта с энергией, равной разности энергий уровней, согласно условию частот Бора:

$$E_0 = h\nu_0 = W_a - W_b. \quad (1.4)$$

Строго говоря, здесь (и дальше в (1.5)) предполагается случай бесконечно тяжелого свободного ядра. Другим процессом, осуществляющим указанные переходы, является процесс внутренней конверсии,

в котором разность энергий уровней ядра передается непосредственно атомному электрону.

Частота γ -излучения ν , испускаемого в ядерных переходах, так же как и в других электромагнитных переходах, не является строго монохроматической, а представляет собой спектральное распределение $J(\nu)$, которое, согласно квантовой теории излучения имеет вид

$$J(\nu)d\nu = \frac{\gamma}{2\pi} \frac{h\nu \cdot d\nu}{(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2/4}, \quad (1.5)$$

совпадающий с выражением для спектрального распределения электромагнитной волны, испускаемой классическим осциллятором с константой затухания γ .

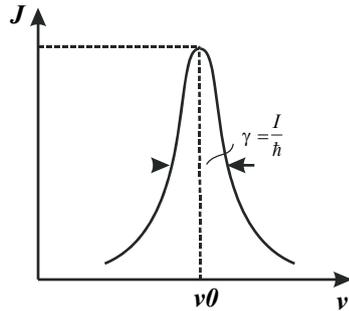


Рис. 1.1. Форма резонансной кривой Лоренца.

Это распределение интенсивности, называемое естественной формой линии испускания, имеет вид кривой Лоренца (рис. 1.1). При частоте ν_0 , соответствующей разности энергий уровней, интенсивность линии максимальна, а ширина ее на половине высоты равна γ . Лоренцевая форма спектральной линии является следствием экспоненциального характера распада возбужденного состояния.

Время жизни возбужденного состояния, определяемое как $\tau = 1/\gamma$, является конечным. Поэтому для измерения энергии состояния имеется в распоряжении только ограниченное время Δt , за которое энергия может быть определена с точностью, не большей ΔE , даваемой соотношением неопределенности Гейзенберга для энергии и времени

$$\Delta E \Delta t \geq \hbar. \quad (1.6)$$

Неопределенность в энергии возбужденного состояния, соответствующую времени $\Delta t = \tau$, называют шириной уровня:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}. \quad (1.7)$$

Ширину ядерных уровней обычно измеряют в электрон-вольтах, пользуясь соотношением

$$\Gamma = \frac{6,58 \cdot 10^{-16}}{\tau(\text{сек})} (\text{эВ}). \quad (1.8)$$

Для основного состояния, живущего бесконечно долго, ширина уровня $\Gamma_0 = 0$, а полуширина линии испускания при переходе в основное состояние определяется шириной возбужденного состояния $\hbar\gamma = \Gamma$. Если имеет место переход из возбужденного состояния a в нижележащее состояние b , а не на основной уровень, то ширина излучаемой линии будет равна сумме ширин уровней a и b :

$$\hbar\gamma_{ab} = \Gamma_a + \Gamma_b. \quad (1.9)$$

Форма линии тоже будет лоренцевой, но вероятность такого перехода уже будет определяться не шириной линии γ_{ab} , а шириной уровня a (предполагаем, что рассматриваемый радиационный переход является единственным типом распада состояния a).

Разумеется, полученная в квантовой механике форма спектральной линии не зависит от структуры излучающей системы. Структура и свойства системы будут сказываться на ширине уровня и, следовательно, только на ширине линии. Поэтому измерение ширин ядерных уровней является важным средством изучения структуры ядра.

§4. Полная ширина уровня и конверсия

Поскольку интересующие нас низколежащие возбужденные состояния ядра могут разряжаться, как уже отмечалось, с помощью внут-

ренной конверсии, т.е. испуская вместо γ -кванта электрон из атома, то вероятность ядерного перехода из состояния a в состояние b будет равна сумме вероятностей радиационного w_γ и конверсионного w_e переходов:

$$W_{ab} = W_\gamma + W_e, \quad (1.10)$$

и полная ширина уровня Γ – сумме парциальных ширин для радиационного Γ_γ и конверсионного Γ_e переходов:

$$\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_e. \quad (1.11)$$

В процессе внутренней конверсии энергия γ -перехода передается одному из электронов внутренних оболочек атома, и этот электрон, называемый конверсионным, выбрасывается с кинетической энергией

$$E_e = h\nu - E_i, \quad (1.12)$$

равной энергии кванта $E = h\nu$ минус энергия связи электрона E_i в i -оболочке. Важной характеристикой этого процесса, напоминающего явление фотоэффекта, является так называемый коэффициент внутренней конверсии α , определяемый как отношение вероятности испускания электронов к вероятности испускания γ -квантов:

$$\alpha = \frac{\Gamma_e}{\Gamma_\gamma}, \quad (1.13)$$

и для полной ширины Γ можно записать выражение

$$\Gamma = (1 + \alpha) \Gamma_\gamma. \quad (1.14)$$

Полный коэффициент конверсии равен сумме коэффициентов конверсии на различных оболочках $K, L_I, L_{II}, L_{III}, \dots$

$$\alpha = \alpha_K + \alpha_L + \dots \quad (1.15)$$

Величина коэффициента конверсии на определенной оболочке данного атома зависит от энергии и структуры поля γ -излучения, кото-

рое классифицируется по порядку мультипольности L , представляющему момент количества движения, уносимый соответствующей парциальной сферической волной в разложении для поля излучения.

Мультипольность излучения, т.е. его характер (магнитный или электрический) и момент L , уносимый квантом, определяются из закона сохранения момента количества движения и четности волновой функции системы ядро + γ -квант. Это приводит к правилам отбора для γ -переходов из исходного состояния ядра со спином I_a и четностью π_b :

$$\begin{aligned} & |I_a - I_b| \leq L \leq |I_a + I_b|, \\ \Delta\pi \equiv \pi_a \pi_b &= (-1)^L \text{ для электрического излучения,} \\ \Delta\pi \equiv \pi_a \pi_b &= (-1)^{L-1} \text{ для магнитного излучения.} \end{aligned} \quad (1.16)$$

Радиационные ширины Γ_γ или соответствующие времена жизни возбужденных состояний зависят от мультипольности, энергии γ -кванта и от конкретного вида волновой функции ядра в начальном и конечном состояниях. Эта зависимость такова, что вероятности переходов возрастают с увеличением энергии и очень резко уменьшаются с увеличением L (вне зависимости от свойств и структуры ядерных состояний).

Поэтому γ -квант обычно имеет наименьший порядок мультипольности, разрешенный правилами отбора

$$L = |I_a - I_b|, \quad (1.17)$$

для чистого электрического или магнитного излучения, либо порядок двух мультиполей – наименьшего L и следующего за ним $L + 1$ – в случае смешанного магнитного и электрического излучений. Оказывается, что вероятность магнитного излучения меньше вероятности электрического излучения той же мультипольности, поэтому если наименьший порядок L имеет магнитное излучение, то может наблюдаться примесь электрического мультиполя $L + 1$. Так, часто встречается смешанное магнитное дипольное и электрическое квадрупольное излучение ($M1 + E2$), но излучение $E1$ или не содержит примеси магнитного мультиполя $M2$, или эта примесь очень мала.

Резкая зависимость вероятности γ -переходов от разности моментов количества движения ΔL приводит к огромному диапазону времен жизни возбужденных состояний ядра, различающихся больше чем на 30 порядков, и является причиной существования долгоживущих изомерных состояний.

Времена жизни возбужденных состояний, с которыми приходится встречаться в интересующих нас экспериментах, лежат в основном в интервале $\sim 10^{-7} \div 10^{-9}$ сек, что соответствует ширинам от 10^{-12} до 10^{-10} эв. Несколько γ -резонансных экспериментов было выполнено и с долгоживущими изомерными состояниями: с $\tau = 9,4 \cdot 10^{-6}$ сек (Zn^{67}) и $\tau = 44$ сек (Ag), дающих чрезвычайно узкие γ -линии.

§5. Линия поглощения

Ширины уровней Γ определяют также вероятности обратных переходов, в которых ядро из начального состояния a переходит в выше лежащее возбужденное состояние b с поглощением γ -кванта.

Обычно поглощение γ -кванта рассматривается как процесс, идущий в две стадии (через состояние составного ядра как через промежуточное состояние). Возникающее после поглощения γ -кванта возбужденное состояние распадается со временем жизни $\tau = \hbar/\Gamma$ в исходное состояние, испуская при этом либо γ -квант, либо электрон конверсии. В первом случае имеет место резонансное рассеяние (резонансная флуоресценция), во втором – поглощение. Выражение для сечения этих процессов $\sigma(E)$ дается формулой Брейта-Вигнера для одиночного резонанса (предполагается неподвижное бесконечно тяжелое ядро)

$$\sigma(E) = \frac{\Gamma^2}{4} \cdot \frac{\sigma_0}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2 / 4}. \quad (1.18)$$

Здесь $\sigma_0 = \sigma(E_0)$ – максимальное резонансное сечение данного процесса для энергии $E = E_0$; максимальное сечение резонансного рассеяния

$$(\sigma_0)_s = 2\pi \lambda^2 \frac{2I_b + 1}{2I_a + 1} \frac{\Gamma_\gamma^2}{\Gamma^2}, \quad (1.19)$$

а для процесса поглощения максимальное сечение

$$(\sigma_0)_a = 2\pi \lambda^2 \frac{2I_b + 1}{2I_a + 1} \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}. \quad (1.20)$$

Различие в максимальных сечениях обоих процессов легко понять. Вероятность перехода из исходного состояния a в состояние b пропорциональна радиационной ширине Γ_γ / Γ (в единицах Γ). Этой же ширине Γ_γ / Γ пропорциональна вероятность того, что обратный переход будет радиационный, а не конверсионный. Поэтому $(\sigma_0)_s \sim \Gamma_\gamma^2 / \Gamma^2$. Для поглощения, рассматриваемого здесь как ослабление пучка, важна только первая стадия процесса – переход $a \rightarrow b$. Каким путем совершится обратный переход $b \rightarrow a$ (с помощью конверсии или радиации), не имеет значения. И тот, и другой переход дает вклад в сечение, поэтому

$$(\sigma_0)_a \sim \Gamma_\gamma / \Gamma \sim 1 / (1 + \alpha)$$

энергетическая зависимость сечения

$$\sigma(E) \sim 1 / [(E - E_0)^2 + \Gamma^2 / 4]$$

имеет форму распределения Лоренца, которую также называют формой Брейта–Вигнера. Поэтому, если падающее на поглотитель излучение имеет в области энергий E_0 постоянную интенсивность $J(E) = J(E_0) = \text{const}$, то распределение интенсивности прошедшего излучения, т.е. форма линии поглощения, будет совпадать с формой линии испускания, как и должно быть по закону Кирхгофа. Когда коэффициент конверсии очень мал ($\alpha \sim 0$), т. е. $\Gamma_\gamma \approx \Gamma$, максимальное резонансное сечение определяется квадратом длины волны излучения:

$$(\sigma_0)_a = (\sigma_0)_s = 2\pi \lambda^2. \quad (1.21)$$

Максимальные резонансные сечения σ_0 очень велики. Даже для сравнительно большой энергии $E_0 \approx 1 \text{ Мэв}$ сечение $\sigma_0 \approx 10^4 \text{ барн}$ и с уменьшением энергии до $E_0 \approx 1 \text{ кэв}$ сечение возрастает до значений $\sigma_0 \approx 10^9 \text{ барн}$. Это сечение соответствует строго монохроматическому излучению с длиной волны $2\pi\lambda$. Практически всегда излучение имеет некоторое спектральное распределение $J(E)$, и поэтому наблюдаемые эффекты будут определяться эффективным сечением

$$\sigma_{\text{эфф}} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma \cdot (E) J(E) dE}{\int_0^{\infty} J(E) dE}. \quad (1.22)$$

Для излучения с постоянной интенсивностью $J(E) = \text{const}$ по всему спектру до граничных значений $E_{\text{гр}} > E_0$ получаем

$$\sigma_{\text{эфф}} = \frac{\pi}{2} \frac{\Gamma}{E_{\text{гр}}} \sigma_0. \quad (1.23)$$

Отсюда видно, что если в опытах по γ -резонансу использовать сплошной спектр тормозного излучения, то эффективное сечение $\sigma_{\text{эфф}}$ становится малым. Доля квантов, используемая для резонанса, из всего распределения, которое для оценки можно считать постоянным, не зависящим от энергии, составляет малую величину ($\sim \Gamma / E_{\text{гр}}$). Ясно, что реальный спектр тормозного излучения отличается от принятого в этой оценке, но такая аппроксимация не дает существенного различия. Для ширины $\Gamma \approx 10^8 \text{ эв}$ и $E_{\text{гр}} \approx 10^4 \div 10^5 \text{ эв}$, этот фактор $\Gamma/E_{\text{гр}} \approx 10^{-12} \div 10^{-13}$ и для получения ощутимых эффектов интенсивности тормозного спектра должны быть огромными. Поэтому применение для этих целей даже интенсивного тормозного излучения от рентгеновских трубок или низковольтных ускорителей становится неэффективным. Вопрос о возможности применить для γ -резонансных экспериментов тормозное излучение был заново проанализирован в работе Кузьмина (1969), и было

показано, что такие эксперименты можно осуществить с ультрамощными рентгеновскими трубками, если для выделения монохроматического излучения использовать подходящий кристаллический монохроматор, содержащий резонансные ядра. В опытах по γ -резонансу для возбуждения ядер используют γ -излучение, испускаемое при высвечивании возбужденных состояний тождественных ядер; так же как и для наблюдения резонанса в оптике, атомы источника и поглотителя берутся тождественными. В этом случае, если линия испускания и линия имеют естественную лоренцевую форму и энергии центров линии совпадают, для эффективного сечения поглощения из (1.22) получаем

$$\sigma_{\text{эфф}} = \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{2\Gamma}. \quad (1.24)$$

§6. Потери энергии на отдачу и доплеровское уширение линии

В действительности линии испускания и поглощения могут быть смещены друг относительно друга. При испускании γ -кванта свободным, первоначально покоившимся ядром это смещение вызвано отдачей ядра в результате получения им импульса \mathbf{p} , в соответствии с законом сохранения импульса. Поэтому энергия E , уносимая γ -квантом с импульсом $\hbar\mathbf{k}$, меньше энергии ядерного перехода E_0 на величину энергии отдачи

$$\Delta E = R = \frac{p^2}{2M} = \frac{(\hbar k)^2}{2M} = \frac{E^2}{2Mc^2}. \quad (1.25)$$

Энергия квантов интересующего нас γ -излучения значительно меньше собственной энергии ядра ($E \ll Mc^2$). Это означает, что энергия отдачи ничтожно мала по сравнению с энергией γ -кванта, $R \ll E$, и с достаточно хорошей точностью принимается, что

$$R \approx \frac{E_0^2}{2Mc^2} \quad (1.26)$$

По такой же причине в (1.25) пренебрегается изменением массы M излучающего (поглощающего) ядра на величину $\delta M = E/c^2$, которое здесь несущественно, но в дальнейшем это изменение необходимо будет учесть. Потеря энергии на отдачу излучающего ядру приводит к смещению линии испускания в сторону меньших энергий на величину R , как показано на рис. 1.2. Такую же энергию отдачи γ -квант должен передать свободному покоящемуся ядру при резонансном поглощении, и поэтому линия поглощения смещена в сторону больших энергий на величину R . В результате центр линии испускания оказывается при энергии, меньшей на величину $2R$ энергии центра линии поглощения. Эта величина даже для тяжелых ядер и при низких энергиях γ -квантов намного больше встречающихся ширин Γ низколежащих уровней ядра.

Получается, что линии испускания и поглощения сильно разнесены по шкале энергий и практически совершенно не перекрываются (рис. 1.2). В этом случае эффективное сечение резонансного поглощения $\sigma_{\text{эфф}}$, зависящее, как видно из выражения (1.22), от степени перекрытия функций $\sigma(E)$ и $J(E)$, будет пренебрежимо мало. Эффект отдачи приводит к существенному отличию процессов испускания и поглощения γ -квантов ядром от аналогичных явлений в оптике. По этой причине ранние попытки обнаружения ядерного резонансного рассеяния не увенчались успехом.

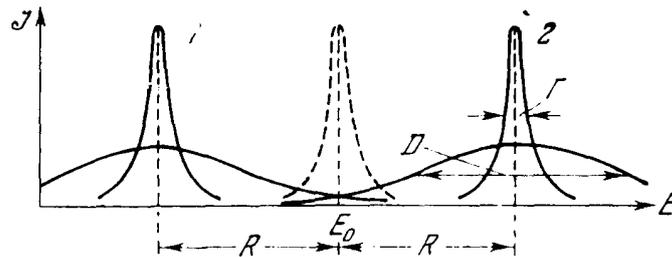


Рис. 1.2. Смещение линии испускания (1) и поглощения (2) из-за потери энергии на отдачу R . С повышением температуры линии уширяются за счет эффекта Доплера и частично перекрываются.

Изображенные на рис. 1.2. линии испускания и поглощения относятся к идеализированному случаю, когда ядра источника и поглотителя в начальном состоянии покоятся. В действительности они участвуют в тепловом движении, и изменение энергии γ -кванта ΔE , например, для газообразного источника, определяется изменением кинетической энергии ядра ΔE_k в результате испускания (поглощения) γ -кванта:

$$\Delta E = \Delta E_k = \frac{(\mathbf{P} - \hbar \mathbf{k})^2}{2M} - \frac{P^2}{2M} = \frac{(\hbar \mathbf{k})^2}{2M} - \frac{P(\hbar \mathbf{k})}{M}, \quad (1.27)$$

где \mathbf{P} есть начальный импульс ядра до эмиссии γ -кванта. Отсюда видно, что изменение энергии γ -кванта ΔE будет определяться не только энергией отдачи свободному ядру $R = (\hbar k)^2/2M$, но и доплеровским смещением, обусловленным тепловым движением ядра:

$$\Delta E_u = \frac{P(\hbar \mathbf{k})}{M} = \frac{v}{c} E_0 \cos(\mathbf{P}, \mathbf{k}). \quad (1.28)$$

Для максвелловского распределения по скоростям v линии испускания и поглощения будут иметь форму такого же распределения

$$w(E)dE = \frac{1}{D\sqrt{\pi}} \exp \left[- \left(\frac{\Delta E_v}{D} \right)^2 \right] \quad (1.29)$$

с доплеровской шириной

$$D = \frac{E_0}{c} \sqrt{\frac{2k_0 T}{M}} = 2\sqrt{Rk_0 T} \quad (1.30)$$

и центрами при $E_0 - R$ и $E_0 + R$ соответственно (k_0 – постоянная Больцмана).

При повышении температуры T эти распределения будут уширяться, за счет чего можно добиться частичного их перекрытия (рис. 1.2) и осуществить, следовательно, условия резонанса для части

испускаемых γ -квантов. Используя метод нагревания источника, Малмфорсу (1952) удалось наблюдать резонансное рассеяние γ -квантов 411 кэв на ядрах Hg^{198} . Затем этот метод был значительно усовершенствован Метцгером (1960).

Увеличение перекрытия линий испускания и поглощения может быть достигнуто за счет доплеровского сдвига линии при движении источника относительно поглотителя с большой скоростью V . Именно такой метод механического движения источника был исторически первым, позволившим осуществить наблюдения γ -резонанса (Мун, 1951). Оба указанных метода, позволившие частично скомпенсировать потерю энергии на отдачу, ограничены областью тяжелых ядер с $A > 150$ и $E_0 > 500$ кэв. Эта область определяется ограниченными возможностями получения высоких температур или больших скоростей.

В некоторых экспериментах для наблюдения γ -резонанса энергия испускаемых γ -квантов восстанавливалась до резонансной за счет отдачи от предшествующих β - и γ -переходов. Этот метод, называемый методом каскадных переходов, может быть применен в ряде случаев, если время жизни резонансного уровня τ значительно короче времени, в течение которого ядро отдачи движется до столкновения с атомами источника. Это, как правило, реализуется лишь в газообразных источниках.

§7. Эффект Мессбауэра

Описанные выше методы наблюдения γ -резонанса являются не очень эффективными. Совершенно отличная ситуация может возникнуть, когда излучающее (поглощающее) ядро не свободно, а связано в кристаллической решетке или вообще находится в конденсированной фазе. Наблюдая резонансное поглощение γ -лучей 129 кэв Ir^{191} в металлическом иридии, Мессбауэр обнаружил усиление резонансного эффекта с понижением температуры вместо ожидаемого ослабления эффекта из-за отмеченного выше уменьшения перекрытия линий испускания и поглощения. Тщательное повторение этих экспериментов привело Мес-

сбауэра в 1958 г. к выводу, что ядро, связанное в кристалле, не может воспринимать энергию отдачи, как свободное, и при определенных условиях существует вероятность испускания (поглощения) γ -квантов без потери энергии на отдачу. Этот эффект безотдачного испускания или поглощения γ -квантов получил название эффекта Мессбауэра.

Природу этого эффекта легко понять, если мы вместо свободных ядер рассмотрим сначала ядра в многоатомных молекулах газа. В этом случае изменение энергии испускаемых γ -квантов ΔE будет определяться не только изменением трансляционного движения молекулы ΔE_k , но и изменением ее квантового состояния, при котором внутренняя энергия меняется на дискретную величину ΔE_m :

$$\Delta E = \Delta E_k + \Delta E_m. \quad (1.35)$$

Если в рассматриваемом процессе внутреннее состояние молекулы не изменится ($\Delta E_m = 0$), форма γ -линии снова будет определяться выражением (1.33), но так как масса молекулы может быть значительно больше массы ядра, а ее тепловые скорости при заданной температуре будут соответственно меньше, максвелловское распределение линии (рис. 1.2) получается более узким и его центр сдвигается ближе к E_0 . В общем случае наряду с этой линией в спектре будут присутствовать побочные линии той же формы, для которых $\Delta E_m \neq 0$. Положения линий определяются спектром состояний молекулы, а их относительные интенсивности зависят от относительной вероятности передачи различной энергии ΔE_m . Если молекула находится в основном состоянии, передаваемая ей энергия может быть только положительной ($\Delta E_m > 0$). Молекулы, находящиеся в возбужденном состоянии, могут не только получать энергию, но и передавать ее γ -кванту, переходя в более низкое энергетическое состояние, тогда $\Delta E_m < 0$.

Рассмотрим теперь ядро, связанное в кристалле. Аналогично случаю молекулы при испускании γ -кванта энергия, передаваемая кристаллу, также определяется выражением (1.35), только здесь первый член уже представляет изменение трансляционной энергии всего кристалла как целого, а второй дает изменение его внутренней энергии. Вследст-

вие большой массы кристалла ($M \rightarrow \infty$) изменение трансляционной энергии ΔE_k практически равно нулю и существенно только изменение его внутреннего состояния. В тех случаях, когда энергия кристалла остается неизменной, вся энергия ядерного перехода уносится γ -квантом, и потери энергии на отдачу не будет. Аналогичные процессы встречались уже давно при изучении рентгеновских лучей и в нейтронной физике. При рассеянии рентгеновских лучей кристаллом часть излучения рассеивается когерентно и передает импульс отражающему кристаллу без потери энергии на отдачу. Еще в 1939 г. Лэмб развил теорию резонансного поглощения медленных нейтронов ядрами в кристаллической решетке и предсказал существование процесса захвата нейтронов без передачи энергии решетке. Аналогия между этими давно известными явлениями и ядерным γ -резонансом в кристаллах долго не замечалась и была обнаружена Мессбауэром, давшим на основе теории Лэмба правильное описание наблюдаемого им эффекта.

Чтобы понять ту новую идею, которую Мессбауэр внес в анализ испускания и рассеяния γ -квантов ядрами и связанными в твердых телах, необходимо рассмотреть три различных случая.

1. Если энергия отдачи свободного атома велика по сравнению с энергией связи атома в твердом теле, то атом будет выбит из своего положения в решетке. Минимальная энергия, необходимая для смещения атома, известна из исследований радиационных повреждений и обычно лежит в области 15-30 эв. В этих условиях применим приведенный выше анализ случая свободного атома.

2. Если энергия отдачи свободного атома больше характерной энергии колебаний решетки (энергии фононов), но меньше энергии, необходимой для смещения, то атом будет оставаться на своем месте, а его энергия отдачи будет расходоваться на нагревание решетки.

3. Если энергия отдачи меньше энергии фононов, то возникает новый эффект, обусловленный тем, что решетка является квантовой системой, которая не может возбуждаться произвольным образом. Этот эффект и является причиной неожиданного возрастания рассеяния γ -квантов при низких температурах, впервые наблюдавшегося Мессбауэром.

Это явление проще всего объяснить на эйнштейновской модели твердого тела, согласно которой твердое тело описывается совокупностью $3N$ осцилляторов (где N – число атомов в твердом теле), имеющих одинаковую частоту ω . При этом состояние твердого тела задается квантовыми числами осцилляторов. Единственно возможные изменения состояния твердого тела сводятся к возрастанию или уменьшению одного или нескольких квантовых чисел. Эти изменения соответствуют поглощению фонона с энергией $\hbar\omega$, которая в реальных твердых телах обычно равна по порядку величины 10^{-2} эВ. Испускание γ -кванта сопровождается теперь передачей энергии решетке частями, кратными этой энергии фонона ($0, \pm \hbar\omega, \pm 2 \hbar\omega, \dots$). В этом утверждении содержится также возможность процесса *без* передачи энергии.

Было показано, что при усреднении по большому числу процессов испускания передаваемая энергия, приходящаяся на один процесс, точно равна отдаче свободного атома. Используя этот факт и полагая, что E_R гораздо меньше $\hbar\omega$, так что можно пренебречь двухфононными процессами, мы можем написать выражение, которое непосредственно определяет величину f – долю (вероятность) процессов испускания γ -квантов, происходящих без возбуждения решетки:

$$E_R = (1 - f) \hbar\omega,$$

или

$$f = 1 - E_R / \hbar\omega. \quad (1.35)$$

Только эти процессы приводят к эффекту Мессбауэра. Поэтому величину f часто называют коэффициентом Мессбауэра.

Это рассмотрение в равной степени применимо и к рассеянию рентгеновских лучей, где различие между упругими и неупругими процессами хорошо известно. Упругое рассеяние эквивалентно рассеянию без возбуждения решетки. Общее выражение вероятности упругих, или бесфононных, процессов имеет вид

$$f = \exp\left[-\frac{4\pi^2 \langle x^2 \rangle}{\lambda^2}\right] = \exp\left[-k^2 \langle x^2 \rangle\right] \quad (1.36)$$

где λ – длина волны γ -кванта, $k = 2\pi/\lambda = E/\hbar c$ и $\langle x^2 \rangle$ – компонента среднего квадрата амплитуды колебаний ядра в направлении вылета γ -кванта. Чтобы получить значение f , близкое к единице, необходимо иметь $k^2 \langle x^2 \rangle \ll 1$, откуда следует требование малости среднеквадратичного смещения ядер по сравнению с длиной волны γ -кванта.

Физический смысл этого требования ясен. Если период колебаний атома в решетке мал по сравнению со временем, связанным с испусканием γ -кванта, то фаза испущенной волны будет сильно модулирована. Такая модулированная по фазе волна является немонахроматической, и резонатор, настроенный на немодулированную волну, возбуждается плохо, поскольку возбуждение от проходящего волнового цуга не является когерентным.

Присутствие в спектре испускания несмещенной линии может быть обнаружено в простом эксперименте по поглощению γ -квантов поглотителем, содержащим ядра, тождественные ядрам источника, но находящихся в основном состоянии. Если поглотитель представляет собою кристалл такой же, как источник, то несмещенная линия в спектре поглощения полностью перекрывается с линией испускания, и резонансный эффект можно обнаружить в измерениях интенсивности прошедшего через поглотитель γ -излучения. Когда вероятность безотдачного процесса достаточно велика, вклад резонансного сечения ядерного поглощения $\sigma(E)$ в общее сечение поглощения (1.2) будет заметным. Экспериментально резонансное ослабление пучка может быть обнаружено из измерений интенсивности прошедшего излучения в зависимости от температуры источника или поглотителя или от толщины поглотителя.

Другой, более богатый своими возможностями способ наблюдения γ -резонанса основан на методе доплеровского сдвига линий. Если источнику сообщить скорость v относительно поглотителя, то за счет доплер-эффекта относительное положение линии испускания и линии поглощения сместится на величину $\Delta E_v = (v/c) E_0$. Естественные ширины γ -линий, с которыми приходится иметь дело, как уже отмечалось,

весьма малы и даже очень малые скорости v приводят к сдвигам ΔE_ν порядка ширины линии Γ и, следовательно, к резкому уменьшению резонансного эффекта. Например, резонансное поглощение, наблюдаемое с линией 14.4 кэВ Fe^{57} , для неподвижных источника и поглотителя может быть практически полностью устранено при скоростях v порядка нескольких мм/сек. В первых экспериментах Мессбауэра с линией 129 кэВ Ir^{191} доля безотдачного излучения составляла всего лишь несколько процентов. Обнаружить в этих условиях резонансный эффект мог только очень искусный и внимательный экспериментатор. Однако в ряде случаев доля безотдачного процесса составляет десятки процентов от полной интенсивности излучения, и наблюдаемые резонансные эффекты достаточно велики.

Глава 2. Методика эксперимента

§1. Прохождение γ -лучей через поглотитель

Схема радиационных переходов, с которыми мы имеем дело при γ -резонансе, изображена на рис. 2.1. Испускаемый γ -квант при переходе из возбужденного состояния W_B в основное W_0 в ядре A , попадая на ядро B , переводит его в возбужденное состояние, которое затем разряжается путем испускания γ -кванта (в этом случае имеет место рассеяние) или электрона конверсии.

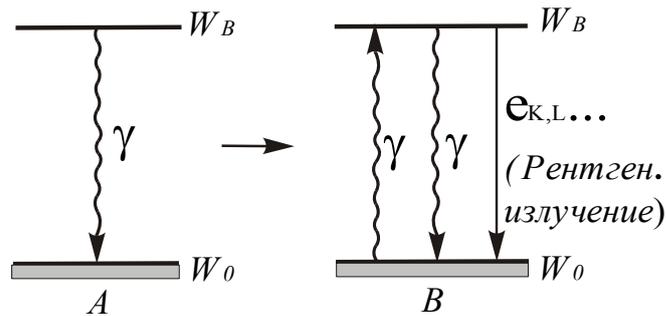


Рис. 2.1. Схема переходов в ядрах источника A и поглотителя B .

Обратный переход в ядре B происходит путем испускания γ -кванта или электрона конверсии ($e_{K,L,\dots}$), который сопровождается рентгеновским переходом

Как уже отмечалось раньше, ослабление пучка γ -лучей обусловлено суммарным действием обоих процессов. Методы наблюдения могут быть различными в зависимости от регистрируемого процесса.

В большинстве работ применяется метод ослабления пучка, который часто называют методом поглощения. При этом эксперимент проводится в расположении, схематически изображенном на рис. 2.2.

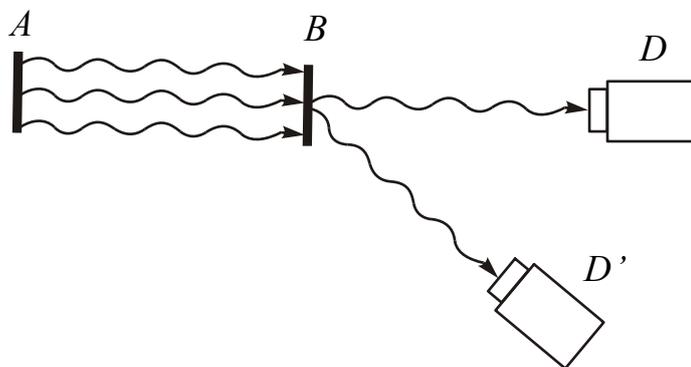


Рис. 2.2. Геометрия расположения детектора при исследовании резонансного поглощения (D) и рассеяния (D').

Гамма-лучи, испускаемые радиоактивным источником A , проходят через резонансный поглотитель B и детектируются счетчиком D . Измеряется поглощение в резонансном поглотителе. Можно наблюдать не изменение интенсивности проходящего пучка, а рассеяние (положение счетчика D'). В этом случае соотношение между наблюдаемым эффектом и фоном может быть значительно улучшено, так как фон, обусловленный прохождением прямого пучка, отсутствует. Фон будет создаваться только за счет других нерезонансных процессов (релеевское и комптоновское рассеяние и др.). Однако интенсивности рассеянного излучения значительно меньше (см. гл. 4). В некоторых экспериментах акты резонанса детектировались по электронам конверсии или рентгеновскому излучению. В методе поглощения интенсивность резонансной линии $J(X)$ после прохождения резонансного поглотителя толщины X ослабевает за счет актов резонанса, сопровождающихся как рассеянным γ -квантом, так и конверсионным электроном. В этом методе детектор, установленный за поглотителем, регистрирует как резонансное, так и нерезонансное излучение, характеризуемое широким квазинепрерывным распределением. Для части безотдачного γ -излучения с энергией в интервале ε и $\varepsilon + d\varepsilon$ ($\varepsilon = (E - E_0)/\Gamma/2$ – энергия

в единицах $\Gamma/2$, отсчитываемая от положения центра линии E_0) пропускание поглотителя толщиной X определяется величиной

$$J_\varepsilon(X) = J_\varepsilon(0)e^{-[\mu_\varepsilon + \mu(E)]X}; \quad (2.1)$$

$J_\varepsilon(0)$ есть функция распределения испускаемого резонансного излучения. Для излучения, характеризуемого лоренцевой формой линии,

$$J_\varepsilon(0) = \frac{1}{\pi} \frac{f}{1 + \varepsilon^2} \quad (2.2)$$

Нормировочный коэффициент f/π выбран так, чтобы площадь под линией была равна f . Коэффициент обычного электронного поглощения μ_ε вблизи резонансной линии можно считать постоянным, так как изменения энергии испускаемых квантов ничтожно малы. В то же время ядерное поглощение в тонком слое с плотностью резонансных ядер n характеризуется коэффициентом

$$\mu(E) = \sigma(E)f'n = \frac{\sigma_0 f' n}{1 + \varepsilon^2}, \quad (2.3)$$

зависящим от энергии резонансным образом. Если число ядер рассматриваемого элемента в единице объема поглотителя равно n_z , то $n = n_z \cdot b$, где b – содержание резонансного изотопа.

Интегрируя выражение (2.1) по всему энергетическому распределению, мы получим пропускание для всех γ -квантов, испущенных без отдачи,

$$J_p(X) = \frac{e^{-\mu_\varepsilon X}}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{f}{1 + \varepsilon^2} \exp\left(-\frac{\sigma_0 f' n X}{1 + \varepsilon^2}\right) d\varepsilon. \quad (2.4)$$

Вычисление этого интеграла дает

$$J(X) = e^{-\mu_\varepsilon X} f e^{-C/2} I_0(iC/2), \quad (2.5)$$

где $C = \sigma_0 f' nX$ обозначает эффективную толщину поглотителя, а $I_0(\lambda)$ – функция Бесселя нулевого порядка от мнимого аргумента. Чтобы получить суммарную интенсивность излучения $J(X)$, регистрируемую детектором, необходимо к (2.5) добавить интенсивность прошедшего поглотитель нерезонансного излучения $(1 - f)e^{-\mu_e X}$; тогда

$$J(X) = e^{-\mu_e X} [1 - f(1 - e^{-C/2} I_0(iC/2))]. \quad (2.6)$$

Выражение (2.6) приобретает простой вид в двух важных частных случаях. Для очень тонкого поглотителя можно заменить показательную функцию первым членом ее разложения в ряд и положить $I_0 = 1$, тогда

$$J(X) = e^{-\mu_e X} \left[1 - f f' \frac{\sigma_0 nX}{2} \right] \text{ для } C \ll 1; \quad (2.7)$$

для очень толстого поглотителя получаем

$$J(X) = e^{-\mu_e X} (1 - f) \text{ для } C \gg 1. \quad (2.8)$$

В этом случае поглощаются все испускаемые без отдачи γ -кванты. Интенсивность прошедшего излучения не зависит от f' и позволяет непосредственно определить f . Полученное выражение для пропускания не учитывает постороннего γ -излучения, которое может присутствовать в источнике. Чтобы произвести такой учет, необходимо вместо f взять величину αf , где множитель α дает относительную долю резонансных квантов в спектре испускания.

§2. Динамический эксперимент

Как уже отмечалось, более богатый своими возможностями способ наблюдения γ -резонанса основан на методе доплеровского сдвига линий. Если источнику сообщить скорость v относительно поглотителя, то за счет доплер-эффекта относительное положение линии испускания и линии поглощения сместится на величину $\Delta E_v = (v/c) E_0$. Естествен-

ные ширины γ -линий, с которыми приходится иметь дело, весьма малы, и даже очень малые скорости v приводят к сдвигам ΔE_v порядка ширины линий Γ .

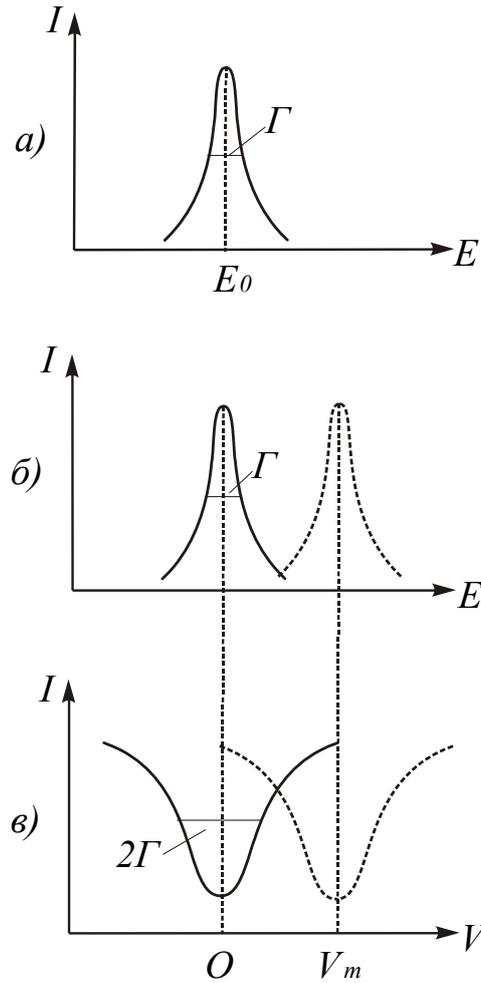


Рис. 2.3. Линии испускания (а) и поглощения (б) и наблюдаемый спектр поглощения (в).

Если положение линии испускания и поглощения совпадают, максимальное поглощение будет наблюдаться при скорости $v = 0$; для несовпадающих линий максимальное поглощение будет при некоторой скорости v_m

Измеряя величину поглощения в зависимости от скорости v , мы получим спектр резонансного поглощения рис. 2.3., в. Если источник и поглотитель представляют собой идентичные кристаллические решетки, находящиеся в одинаковом термодинамическом состоянии, то линия испускания полностью перекрывается с линией поглощения (рис. 2.3. а

и δ) и максимальное поглощение будет при нулевой скорости. С увеличением скорости поглощение будет падать и при достаточно большой скорости v_∞ ($v_\infty \gg c\Gamma/E_0$), когда линии испускания и поглощения практически не перекрываются резонансное поглощение отсутствует. Форма спектра поглощения характеризуется выражением для интенсивности прошедшего γ -излучения $J_\nu(X)$ при заданной скорости v . Учитывая доплеровское смещение энергии γ -квантов, получим для сечения поглощения зависимость

$$\sigma(E) \sim \frac{\sigma_0}{1 + (\varepsilon - \varepsilon_\nu)^2}, \quad (2.9)$$

где $\varepsilon_\nu = \frac{(v/c)E_0}{\Gamma/2}$ – доплеровская добавка к энергии, выраженная в единицах $\Gamma/2$.

Легко видеть, что пропускание с поглотителем толщиной X мы получим, если проинтегрируем по всем энергиям выражение (2.1) и учтем (2.9)

$$J_\nu(X) = \int_{-\infty}^{+\infty} J_\varepsilon(0) e^{-\left(\frac{\sigma_0 f' n}{1 + (\varepsilon - \varepsilon_\nu)^2} + \mu_\varepsilon\right) X} d\varepsilon, \quad (2.10)$$

Для линии испускания лоренцевой формы (2.2) получаем

$$J_\nu(X) = \frac{e^{-\mu_\varepsilon X}}{\pi} \int \frac{f}{1 + \varepsilon^2} e^{-\frac{c}{1 + (\varepsilon - \varepsilon_\nu)^2} X} d\varepsilon. \quad (2.11)$$

Выражение (2.11) дает форму спектра поглощения. При больших скоростях v , когда мы уходим за область резонанса ($v = v_\infty$), интенсивность $J_\infty(X)$ будет постоянной, не зависящей от скорости. В эксперименте обычно измеряется величина

$$\eta_\nu = \frac{J_\infty - J_\nu}{J_\infty}. \quad (2.12)$$

В общем случае интеграл (2.11) не берется и требуется численное интегрирование. Для тонкого поглотителя ($C \ll 1$) экспонента в интеграле может быть заменена первыми членами разложения в ряд и вычисление интеграла дает спектр поглощения лоренцевой формы с полушириной 2Γ или в единицах скорости $-v = c(2\Gamma/E_0)$. Увеличение толщины поглотителя, как показывает расчет, уширяет линию в спектре поглощения. Это обстоятельство легко понять, если учесть, что при заметной толщине поглотителя начинает проявляться эффект селективного поглощения, состоящий в том, что кванты с энергией вблизи максимума линии поглощаются сильнее, чем в области ее «крыльев». Аналогичное уширение линии испускания возникает за счет самопоглощения в источнике, если в нем содержатся резонансно поглощающие ядра. Таких ядер в источнике в большинстве случаев мало, и основное уширение обусловлено толщиной поглотителя. Это уширение может быть определено экспериментально из измерений с поглотителями различной толщины. При не очень больших толщинах поглотителя зависимость измеряемой ширины Γ , от толщины поглотителя получается линейной, и истинная полуширина может быть получена экстраполяцией к нулевой толщине поглотителя.

Существует ряд причин, помимо селективного поглощения, которые изменяют форму линии так, что она становится нелоренцевой. Например, уширение линии может быть вызвано неразрешенной сверхтонкой структурой, обусловленной взаимодействием с электрическими и магнитными полями кристалла, которое будет рассмотрено дальше. Можно показать, что наклон прямой, дающей зависимость Γ , от толщины поглотителя, в случае уширенных линий будет меньше, чем для линии идеальной лоренцевой формы.

Некоторое уширение линии может возникнуть, если пучок γ -лучей недостаточно коллимирован, и поэтому составляющая скорости в направлении γ -квантов размыта в некотором интервале v и $v + \Delta v$, что приводит к соответствующему доплеровскому размытию пучка γ -квантов.

§3. Расчет параметров спектров поглощения

Наблюдаемый спектр поглощения можно характеризовать рядом экспериментальных параметров, связанных с физическими величинами и эффектами, проявляющимися при γ -резонансе. Такими параметрами являются, например, высота и площадь под линией, зависящие от величин f и f' , экспериментальная ширина линии Γ_s , форма и положение линии. При наличии сверхтонкого взаимодействия в спектре поглощения появляется сверхтонкая структура с той или иной степенью разрешения, характеризующаяся своими параметрами. Чтобы из экспериментального спектра определить истинное значение физических величин, как правило, требуется внесение ряда поправок. В некоторых случаях это может быть сделано с помощью эмпирических формул, полученных в работе Ширли, Каплана и Ахселя (1961) на основе результатов численного расчета, проведенного Маргулисом и Эрманом (1961). Более общие формулы для расчета параметров экспериментального спектра одиночных и расщепленных линий с учетом самопоглощения в источнике получены в работе Быкова и Фам Зуи Хиена (1962). Для одиночных линий испускания и поглощения необходимо различать следующие случаи:

1. В источнике с эффективной толщиной C_s самопоглощение отсутствует. Тогда величина максимального поглощения $\eta_0(C_a)$, соответствующего нулевой скорости, т.е. высота резонансной линии, дается вторым членом, стоящим в квадратных скобках в выражении (2.6) (заметим, что $e^{-\mu_e X} = J_\infty$). Другим важным параметром является площадь под наблюдаемой линией спектра

$$S_s = \int_{-\infty}^{+\infty} \eta_v(C_a) d\varepsilon_v, \quad (2.13)$$

для которой получается следующее выражение:

$$S_s = \alpha f \pi K(C_a), \quad (2.14)$$

где

$$K(C_a) = C_a e^{-\frac{C_a}{2}} \left[I_0\left(i \frac{C_a}{2}\right) + I_1\left(i \frac{C_a}{2}\right) \right] \quad (2.15)$$

($I_0(\lambda)$ и $I_1(\lambda)$ – функции Бесселя от мнимого аргумента соответственно нулевого и первого порядка). Ширину спектра на половине высоты $2\Gamma_3(C_a)$ в некотором интервале изменения эффективной толщины поглотителя C_a дает следующая формула, полученная в предположении, что экспериментальная форма линии $\eta_\nu(C_a)$ может быть аппроксимирована кривой Лоренца:

$$\Gamma_3(C_a) = \frac{K(C_a)}{1 - e^{-C_a/2} I_0(iC_a/2)} \quad (2.16)$$

В предельных случаях для тонкого и бесконечно толстого поглотителей отсюда получаем

$$\Gamma_3(C_a) \rightarrow 2 \text{ для } C_a \rightarrow 0,$$

$$\Gamma_3(C_a) \rightarrow 2 \sqrt{\frac{C_a}{\pi}} \text{ для } C_a \rightarrow \infty. \quad (2.17)$$

Выражение (2.16) дает хорошее согласие с численными расчетами при $0 \leq C_a \leq 6$; при больших эффективных толщинах обнаруживаются отклонения, достигающие 3% при $C_a = 10$.

2. При наличии самопоглощения в источнике с эффективной толщиной C_s экспериментальный спектр $\eta_\nu(C_a + C_s)$ имеет более сложный вид. Площадь под этим спектром по-прежнему дается выражением (2.14). Отсутствие зависимости параметра S_3 от формы спектра испускания и, в частности, от самопоглощения в источнике, делает этот параметр очень удобным. Кроме того, он не зависит от паразитных вибраций установки. Для максимального поглощения η_0 ($\nu = 0$) получается выражение

$$\eta_0(C_a + C_s) = \frac{\alpha f}{\pi K(C_s)} [K(C_s) + K(C_a) - K(C_a + C_s)]. \quad (2.18)$$

Экспериментальное нахождение этой зависимости позволяет определить вероятность безотдачного поглощения f' . Видно, что параметр η_0 чувствителен к форме спектра испускания. Поэтому более надежные результаты для f' можно получить из зависимости интегрального поглощения S , от C_a .

Если в результате сверхтонкого взаимодействия спектр поглощения полностью расщеплен на m компонент, то можно записать

$$\sigma(E)n_a X = \sum_{i=1}^m \frac{C_{ia}}{1 + (\varepsilon + \Delta_i)^2}, \quad (2.19)$$

где Δ_i – положение i -компоненты относительно некоторого фиксированного уровня энергии, $C_{ia} = \beta_i C_a$ (β_i – относительная интенсивность i -й компоненты). Случай хорошо разрешенных компонент не вызывает осложнений, и к каждой компоненте можно применить вышеуказанные результаты, полученные для одиночных линий. Однако определение параметров спектра в случае сложных линий, образованных неразрешенными компонентами, требует более сложных расчетов.

Глава 3. Сверхтонкая структура мессбауэровских спектров

Более широкая область применения эффекта Мессбауэра зависит только от малости самой ширины линии, а не от, казалось бы, более общей характеристики – относительной ширины линии. Определяющим фактором в этом случае является наличие ширины линий, малых по сравнению с характерными энергиями взаимодействия ядра с окружающими его электронами, например с энергиями взаимодействия магнитного дипольного момента ядра с магнитными электронами или с энергиями взаимодействия электрического квадрупольного момента ядра с градиентом кристаллического поля.

До открытия Мессбауэра возможность разрешить сверхтонкую структуру непосредственно в спектре γ -лучей, испускаемых при переходах между ядерными уровнями, никогда не считалась реальной, хотя менее прямое измерение квадрупольного и магнитного взаимодействий можно было проводить методом угловых γ - γ -корреляций.

Спектр сверхтонкой структуры получают следующим образом. Радиоактивное вещество, из которого нужно приготовить источник, вводится в такой материал, где его ядерные уровни остаются нерасщепленными. Для этого подходит любой диамагнитный или парамагнитный металл с кубической решеткой, если радиоактивные атомы располагаются в узлах этой решетки. Затем источник устанавливается на «модуляторе скоростей», т.е. на механическом устройстве, обеспечивающем движение, создающее доплеровский сдвиг.

Неподвижный поглотитель помещается в этом случае между источником и детектором. Если уровни ядер в поглотителе расщеплены сверхтонким взаимодействием, то поглощение будет происходить при ряде различных энергий. Скорость счета в детекторе будет падать каждый раз, когда сообщаемая источнику доплеровская скорость приводит к совпадению энергии γ -квантов, испускаемых источником, с энергией, поглощаемой ядрами поглотителя.

§1. Изомерный сдвиг

Спектрометр, основанный на эффекте Мессбауэра, позволяет сравнивать с большой точностью энергии ядерных переходов в двух веществах. На первый взгляд это не имеет особо большого значения, если уровни не расщеплены, поскольку обычно считают, что сами ядерный уровни имеют строго определенное положение. Эта точка зрения не учитывает того факта, что ядро окружено и пронизано электронным зарядом, с которым оно взаимодействует электростатически. Энергию взаимодействия можно вычислить на основе классических представлений, рассматривая однородно заряженное сферическое ядро, находящееся в облаке заряда своих s -электронов. Изменение плотности s -электронов, которое может возникнуть, например, вследствие изменения валентности, вызовет изменение кулоновского взаимодействия и приведет к сдвигу ядерных уровней. Этот эффект допустимо рассматривать как часть электрической сверхтонкой структуры, которую можно назвать «электрическим монополярным взаимодействием» по аналогии с электрическим квадрупольным взаимодействием. Однако почти повсеместное распространение получил термин «изомерный сдвиг», так как эффект зависит от разности радиусов ядра в основном (осн.) и *изомерном*, возбужденном (возб.) состояниях¹. Используется также термин «химический сдвиг».

Этот электростатический сдвиг ядерного уровня легко вычислить исходя из следующей модели. Предположим, что ядро является однородно заряженной сферой, радиус которой R определяется из эмпирической формулы, и что плотность электронного заряда ρ постоянна в области ядра. Для упрощения расчетов определим разность электростатических взаимодействий гипотетического точечного ядра и реального ядра с радиусом R при условии, что оба ядра имеют одинаковый заряд. Для точечного ядра электростатический потенциал V_T равен Ze/r , а для

¹ Впервые в опытах по эффекту Мессбауэра изомерный сдвиг наблюдали Кистнер и Саньяр (1960). Ранее он был обнаружен в оптике, где был найден сдвиг спектральных линий для ядер, находящихся в изомерном, возбужденном состоянии.

ядра с радиусом R потенциал V равен $(Ze/R) \times [3/2 - r^2/2R^2]$ при $r < R$, и равен Ze/r при $r \geq R$. Разность энергий δE определяется интегралом

$$\delta E = \int_0^{\infty} \rho(V - V_T) 4\pi r^2 dr = \frac{4\pi\rho Ze}{R} \int_0^R \left(\frac{3}{2} - \frac{r^2}{2R^2} - \frac{R}{r} \right) r^2 dr \quad (3.1)$$

или

$$\delta E = -\frac{2\pi}{5} Ze\rho R^2 = \frac{2\pi}{5} Ze^2 |\psi(0)|^2 R^2, \quad (3.2)$$

где $-e |\psi(0)|^2$ – плотность электронного заряда ρ .

Это выражение связывает электростатическую энергию ядра с его радиусом, а ядра в разных энергетических состояниях, вообще говоря, имеют различные радиусы. Однако измеряются не положения отдельных ядерных уровней, а γ -кванты, возникающие при переходах между такими уровнями. Энергия γ -кванта содержит разность электростатических энергий ядра в двух различных энергетических состояниях, которые по нашей модели отличаются только радиусами ядра. Следовательно, изменение энергии γ -кванта за счет электростатического взаимодействия ядра с электронами определяется разностью двух членов типа (3.1.2), написанных для ядра в основном и возбужденном состояниях:

$$\delta E_{\text{возб}} - \delta E_{\text{осн}} = \frac{2\pi}{5} Ze^2 |\psi(0)|^2 (R_{\text{возб}}^2 - R_{\text{осн}}^2). \quad (3.3)$$

(На этом этапе вклад в δE от точечного ядра выпадает.)

Для реально существующих изменений в $|\psi(0)|^2$ сдвиг энергии, определяемый выражением (3.1.3), исчезающе мал, если его рассматривать с точки зрения точности приборов, измеряющих абсолютные значения энергии, таких, как спектрометр с изогнутым кристаллом. В мессбауэровских опытах этот сдвиг становится измеримым, так как мы сравниваем энергию ядерного перехода в источнике с энергией пере-

да в поглотителе. С помощью этого метода при выборе в качестве стандарта подходящего вещества можно измерять малые различия в энергии γ -лучей, не зная энергию перехода в стандартном веществе. Например, в случае Fe^{57} энергия γ -кванта, равная $1,436 \cdot 10^4$ эв, известна с точностью ± 10 эв, но мы можем легко измерить разности энергий γ -квантов с точностью до 10^{-10} эв.

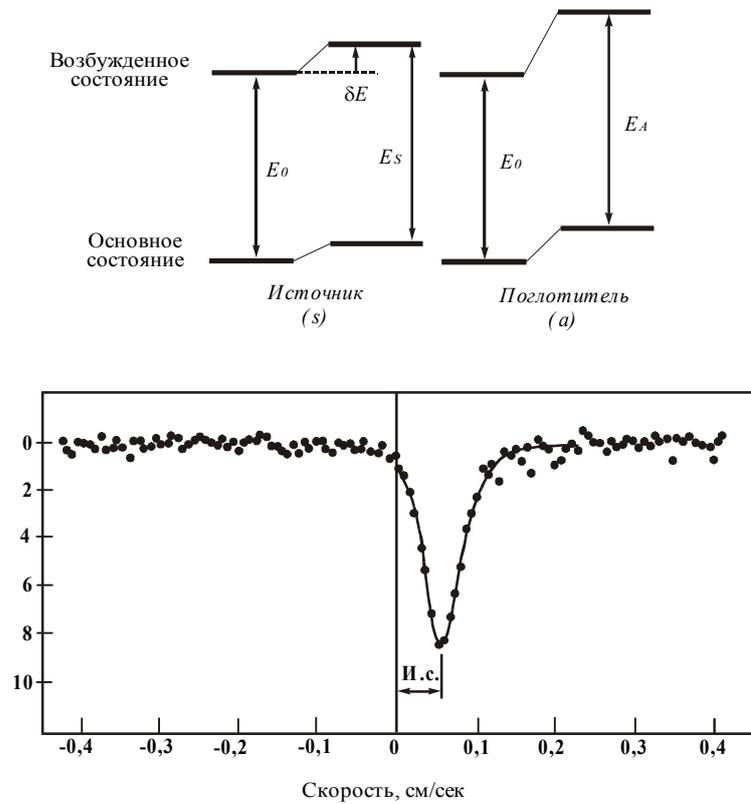


Рис. 3.1. Изомерный сдвиг. Приведен мессбауэровский спектр поглотителя – ферроцианида брома, источник Co^{57} в хrome.

Изомерный сдвиг (И.С.) относительно некоторого стандартного вещества можно получить, взяв разность выражений (3.3), написанных для стандартного источника и для поглотителя:

$$\delta = \frac{2\pi}{5} Z e^2 (R_{\text{возб}}^2 - R_{\text{осн}}^2) \left\{ |\psi_a(0)|^2 - |\psi_s(0)|^2 \right\}, \quad (3.4)$$

$$\delta = \frac{4\pi}{5} Z e^2 R^2 \frac{\delta R}{R} \left\{ |\psi_a(0)|^2 - |\psi_s(0)|^2 \right\}, \quad (3.5)$$

ядерный атомный
множитель множитель

где $\delta R = R_{\text{возб}} - R_{\text{осн}}$.

Последнее выражение состоит из двух множителей. Второй множитель содержит плотность электронного заряда на ядре, которая, по существу, является атомным, или химическим параметром, так как определяется валентным состоянием атома. Первый множитель содержит только ядерные параметры, в частности разность между радиусом изомерного, возбужденного состояния и радиусом основного состояния.

Характерные значения сдвига были найдены для ионных солей как двухвалентного ($1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^6$), так и трехвалентного ($3d^5$) железа. На первый взгляд может показаться странным, что двух- и трехвалентные соли имеют различный изомерный сдвиг, так как их атомные конфигурации отличаются только d -электроном, который сам не вносит заметного вклада в плотность заряда на ядре $|\psi(0)|^2$. Эффект возникает косвенным путем, за счет $3s$ -электронов, которые проводят часть времени в области, более отдаленной от ядра, чем $3d$ -электроны. Электростатический потенциал, который действует на них в этой области, зависит от экранирующего влияния внутренних электронов. Поэтому добавление d -электрона уменьшает кулоновский потенциал, притягивающий $3s$ -электроны к ядру, и вызывает размазывание волновой функции $3s$ -электронов, уменьшая плотность их заряда на ядре. В этом косвенном механизме удаление 6-го $3d$ -электрона при переходе от Fe^{2+} к Fe^{3+} увеличивает плотность заряда на ядре и создает заметный изомер-

ный сдвиг. Однако, знания этого сдвига недостаточно для определения двух неизвестных в выражении (3.4), так как разность плотностей электронного заряда и изменение радиуса ядра входят в это выражение как множители. Если мы сделаем добавочное предположение, что плотность электронного заряда в ионных солях одинакова с плотностью в свободном ионе, то для получения значений химического множителя можно использовать результаты вычислений по методу Хартри-Фока, проведенных для различных конфигураций многократно ионизированных свободных ионов железа. Следует отметить, что совсем не требуется, чтобы вычисления по методу Хартри-Фока давали точную величину плотности заряда; необходимо только, чтобы они с достаточной точностью учитывали добавления 3d-электрона.

Такой способ дает значение разности радиусов первого возбужденного и основного состояний Fe^{57} . Результат оказался поразительным с двух точек зрения:

- 1) было найдено, что ядро в возбужденном состоянии имеет меньшие размеры, чем в основном состоянии, и
- 2) оказалось, что величина изменения радиуса составляет около одной четверти изменения радиуса, возникающего при добавлении к ядру одного нуклона.

Первый из этих результатов является особенно интересным в свете предсказаний оболочечной модели ядра, согласно которому основное состояние Fe^{57} должно иметь спин $I = 3/2$, в то время как экспериментально твердо установлено, что спин основного состояния равен $1/2$. Спин первого возбужденного состояния, которое энергетически лежит очень близко к основному, равен $3/2$. Результаты мессбауэровских опытов позволяют сделать предположение, что более плотное первое возбужденное состояние соответствует основному состоянию оболочечной модели. Природа реального основного состояния еще не установлена, однако ясно, что оно не может быть чистым состоянием оболочечной модели.

После того как значение δR определено, выражение (3.5) можно использовать для измерения плотности электронного заряда.

§2. Квадрупольное взаимодействие

В предыдущем параграфе рассматривалось влияние электростатического взаимодействия ядра с окружающим его электронным зарядом на *положение* ядерных уровней. Важно понять, что этот эффект был получен в предположении, что ядро является сферическим, а плотность его заряда постоянна. Если условия не выполняются, то возникают другие эффекты, определяемые более высокими членами разложения электростатического взаимодействия по мультиполям. Эти члены приводят не к сдвигу ядерных уровней, а к их расщеплению, т.е. снимают полностью или частично $(2I + 1)$ -кратное вырождение уровней (I – спин ядра).

Вторым не исчезающим членом разложения по мультиполям электростатического взаимодействия ядра с окружающим его электронным зарядом является квадрупольный член. Этот член обусловлен взаимодействием квадрупольного момента ядра Q с градиентом электрического поля, создаваемым другими зарядами кристалла. Квадрупольный момент ядра отражает отклонение формы ядра от сферически симметричной. Сплющенное (плоское) ядро имеет отрицательный квадрупольный момент, в то время как вытянутое (сигарообразное) ядро – положительный. Ядра, спин которых равен 0 или S , являются сферическими симметричными, и их квадрупольный момент равен нулю. Таким образом, основное состояние Fe^{57} с $I = S$ не может иметь квадрупольного расщепления. Градиент поля получается при действии оператора градиент на три компоненты электрического поля, которое является вектором. Следовательно, градиент поля является тензором второго ранга; однако подбором системы координат его можно привести к диагональному виду и полностью определить тремя компонентами $\partial^2 V / \partial x^2, \partial^2 V / \partial y^2, \partial^2 V / \partial z^2$ (обычно обозначаемыми V_{xx}, V_{yy}, V_{zz}). Однако эти три компоненты не являются независимыми, так как они

должны удовлетворять уравнению Лапласа в области, где плотность заряда равна нулю²:

$$V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} = 0. \quad (3.6)$$

В результате остаются только два независимых параметра. Поэтому независимыми обычно выбирают величину V_{zz} , часто обозначаемую через $e\eta$, и η – параметр асимметрии, определяемый выражением

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}. \quad (3.7)$$

Компоненты градиента поля обычно выбираются так, что $|V_{zz}| > |V_{xx}| > |V_{yy}|$. При этом $0 \leq \eta \leq 1$.

Многие свойства тензора градиента электрического поля (ГЭП) можно получить из свойств симметрии кристалла. Например, если кристалл обладает осью симметрии четвертого порядка, то мы выбираем эту ось за ось z тензора ГЭП. Так как вращение на 90° оставляет кристалл неизменным, то оно оставляет неизменным и тензор ГЭП, откуда следует, что компоненты V_{xx} и V_{yy} должны быть равны, и поэтому параметр асимметрии тождественно равен нулю. В этих случаях мы говорим, что имеется аксиально симметричный градиент поля, который полностью определяется своей z -компонентой. Легко показать, что наличия оси третьего порядка (вращение на 120°) также достаточно для обеспечения аксиальной симметрии градиента поля и что наличие двух взаимно перпендикулярных осей симметрии третьего или более высокого порядков приводит к исчезновению градиента поля.

Взаимодействие между электрическим квадрупольным моментом ядра Q и градиентом электрического поля описывается гамильтонианом

$$H = Q \cdot (\nabla E), \quad (3.8)$$

² Плотность заряда s -электронов атома, для ядра которого вычисляется градиент поля, не равна нулю, но так как s -электроны имеют сферически симметричное распределение, то они не дают вклада в градиент поля.

оператор которого имеет следующие собственные значения:

$$E_Q = \frac{eqQ}{4I(2I-1)} \left[3m_i^2 - I(I+1) \right] \left(1 + \frac{\eta^2}{3} \right)^{1/2}, \quad (3.9)$$

$$m_i = I, I-1, \dots, -I.$$

Это выражение содержит только квадрат магнитного квантового числа m_i , и, следовательно, состояния, у которых m_i отличаются только знаком, остаются вырожденными. В случае $I = 3/2$ знак квадрупольного расщепления или знак квадрупольного момента нельзя найти только из квадрупольного сверхтонкого расщепления.

К сожалению, измерения квадрупольного взаимодействия дают только произведение значений момента ядра и градиента поля на ядре. Чтобы подучить значение момента, которое часто оказывается очень важным для проверки моделей ядра, необходимо независимо вычислить тензор ГЭП. Отметим, что эта проблема аналогична проблеме, в которой пришлось столкнуться при рассмотрении изомерного сдвига, когда необходимо было независимо вычислять плотность электронного заряда.

Исследование происхождения ГЭП на ядре является задачей физики твердого тела и атомной физики. Имеется два основных источника ГЭП: 1) заряды окружающих ядро ионов и 2) не целиком заполненные оболочки собственного атома. Окружающие ионы вносят вклад лишь при условии, что их симметрия ниже кубической. Если кристаллическая структура хорошо известна, и если заряды ионов можно считать точечными, то значение ГЭП в месте расположения *атома* можно получить из прямых расчетов электростатического взаимодействия. Однако это не будет ГЭП в месте расположения *ядра*. Последний обычно сильно изменяется электронами собственного атома, волновые функции которых возмущаются в результате взаимодействия с внешним ГЭП, что приводит к созданию добавочного ГЭП от внешних зарядов. Это явление называется антиэкранированием; оно может быть рассчитано.

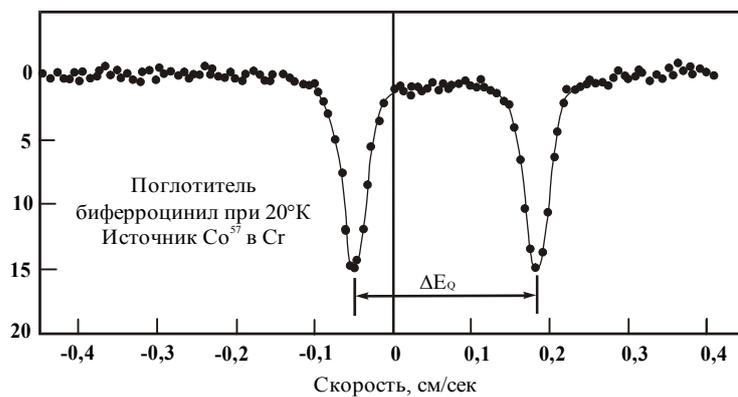
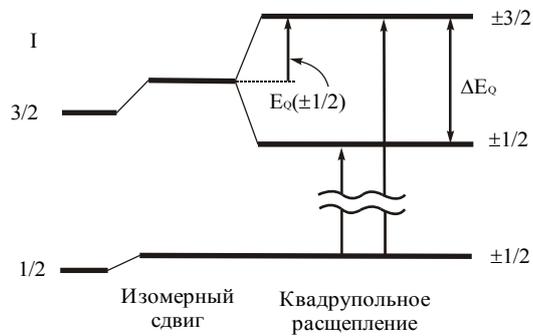


Рис 3.2. Квадрупольное расщепление в Fe^{57} .

ГЭП, обусловленный частично заполненными несферическими оболочками атома, в большинстве случаев превышает ГЭП от внешних зарядов. Эта часть градиента поля также изменяется за счет экранирования или антиэкранирования. С помощью фактора антиэкранирования $(1 - \gamma_\infty)$ мы можем выразить градиент поля через ГЭП, обусловленный внешними зарядами q' :

$$q = q'(1 - \gamma_\infty). \quad (3.10)$$

Важно отметить, что γ_∞ случайно оказалось скаляром, а не тензором второго ранга.

До сих пор мы, касались только положения линий квадрупольной структуры и не учитывали их интенсивность, которая содержит дополнительную информацию. В случае чисто квадрупольного расщепления магнитные подуровни с $m_1 = +3/2$ и $-3/2$ остаются вырожденными, так же как и подуровни с $m_1 = +1/2$ и $-1/2$. Ниже даны относительные вероятности переходов и угловые распределения интенсивностей двух квадрупольных линий для γ -перехода $I = 3/2 \rightarrow I = 1/2$:

Таблица 3.1.

Переход	Относительная вероятность перехода	Угловая зависимость
$\pm \frac{3}{2} \rightarrow \pm \frac{1}{2}$	1	$\frac{3}{2}(1 + \cos^2 \theta)$
$\pm \frac{1}{2} \rightarrow \pm \frac{1}{2}$	1	$1 + \frac{3}{2} \sin^2 \theta$

где θ – угол, отсчитываемый от ос симметрии. Заметим, что:

- 1) ни при каком значении угла ни одна из линий не исчезает;
- 2) максимальное различие в интенсивности имеет место при $\theta = 0$, когда отношение интенсивностей равно 3 (при 90° это отношение равно 3/5);
- 3) интенсивность, усредненная по сфере, одинакова для обеих линий.

Последнее утверждение следует уточнить для случая, когда вероятность процесса без отдачи анизотропна. Угловая зависимость интенсивности, измеренная для монокристалла, определяется в этом случае произведением написанных выше выражений и вероятности процесса без отдачи. Последняя, в общем случае, также является функцией угла θ , отсчитываемого от кристаллической оси с наивысшей симметрией:

Если эти выражения усреднить по сфере, то в общем случае для этих двух переходов получатся разные значения интенсивности. Это эквивалентно утверждению, что в поликристаллическом образце две

линии квадрупольного расщепления в общем случае будут иметь разные интенсивности.

Этот эффект дает простой способ обнаружения анизотропии вероятности процесса без отдачи, не требующий монокристаллов. Однако при этом нельзя, конечно, определить угловую зависимость f . Приведенное выше объяснение эффекта было впервые дано в связи с работой по оловоорганическим соединениям (Гольданский, 1963). Затем он наблюдался в различных железоорганических соединениях (Кинг, 1964). Случай ферроцена является особенно привлекательным для исследований, так как различные моды оптических колебаний кристалла, дающие вклад в анизотропию вероятности процесса без отдачи, известны из спектров комбинационного рассеяния и из инфракрасных спектров.

§3. Магнитная сверхтонкая структура

Наиболее известной частью сверхтонкой структуры, несомненно, является магнитная сверхтонкая структура, возникающая вследствие взаимодействия дипольного магнитного момента ядра μ с магнитным полем на ядре \mathbf{H} , создаваемым электронами собственного атома. (Магнитная сверхтонкая структура всегда отсутствует у ядерных уровней, спины которых равны нулю, так как магнитный момент этих уровней тождественно равен нулю). Гамильтониан взаимодействия имеет вид

$$\mathbf{H}_m = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{H} = -g\mu_n \mathbf{I} \cdot \mathbf{H}, \quad (3.11)$$

а соответствующие уровни энергии описываются выражением

$$E_m = -\frac{\mu H m_I}{I} = -g\mu_n H m_I, \quad (3.12)$$

$$m_I = I, I-1, \dots, -I,$$

где μ_n - ядерный магнетон, а g - гиромагнитное отношение (часто называемое ядерным g -фактором).

Согласно выражению (3.12), имеется $2I + 1$ равноотстоящих друг от друга уровней. Расстояние между соседними уровнями равно $g\mu_n H$,

а расстояние между наинизшим и наивысшим уровнями равно $2g\mu_n H$. На рис. 3.3 показано расщепление уровней Fe^{57} , соответствующее этой формуле.

В обычных опытах по ядерному магнитному резонансу непосредственно наблюдаются переходы между соседними магнитными подуровнями, т.е. переходы, в которых магнитное квантовое число меняется на единицу ($\Delta m = \pm 1$). Однако в опытах по эффекту Мессбауэра наблюдаются γ -переходы *между двумя ядерными уровнями*, каждый из которых может иметь магнитную сверхтонкую структуру. Каждый γ -квант соответствует определенному переходу с некоторого магнитного подуровня возбужденного состояния ядра на подуровень основного состояния. Правила отбора определяются мультипольностью излучения.

В общем случае при γ -переходе между двумя ядерными уровнями со спинами I_1 и I_2 должна сохраняться z -компонента орбитального момента, т.е. орбитальный момент L , уносимый γ -квантом, должен удовлетворять условию

$$|I_1 - I_2| \leq L \leq |I_1 + I_2|.$$

Однако L не может равняться нулю.

Переходы, для которых $L = 1$, называются дипольными. Если при переходе меняется четность, то он является магнитным дипольным переходом $M1$; если четность не меняется, то переход электрический дипольный $E1$. В таблице 3.1 даны более полные характеристики переходов. Вероятности переходов между уровнями в таблице уменьшаются в направлении вниз, так что преобладающими являются переходы, стоящие вверху таблицы. Однако могут иметь место и смешанные переходы, состоящие, например, из $M1$ и $E2$. Для данного L имеют место лишь переходы между подуровнями, для которых $|\Delta m| \leq L$. При этом, конечно, должны выполняться правила изменения четности.

Знаки магнитных моментов ядра в основном и возбужденном состояниях различны. Указаны шесть разрешенных переходов с $\Delta m = 0, \pm 1$. Внизу показан спектр поглощения для FeF_3 при 4 К. Это вещество является антиферромагнетиком.

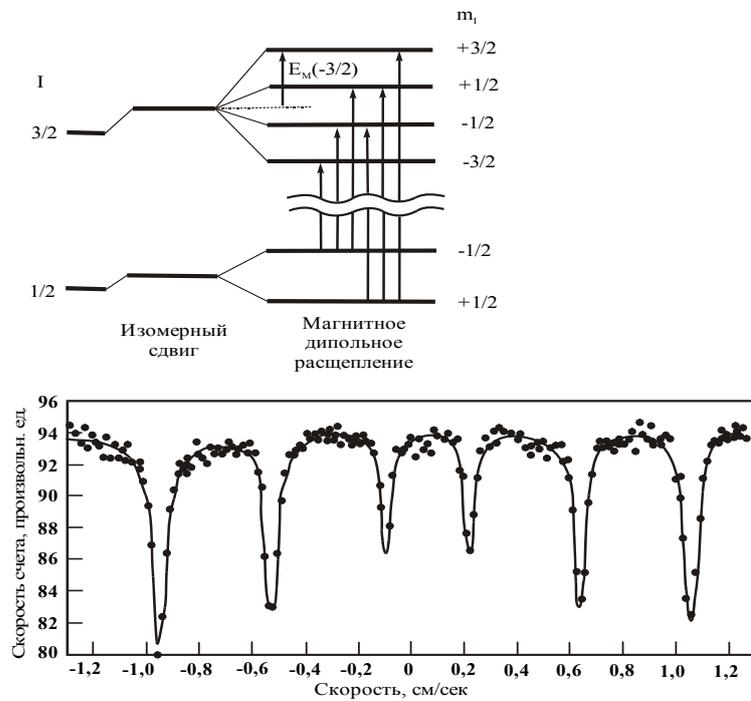


Рис. 3.3. Магнитное сверхтонкое расщепление основного и первого возбужденного состояний Fe^{57} .

При наличии магнитной сверхтонкой структуры можно разделить отдельные переходы между магнитными подуровнями. Поэтому представляет интерес вычисление вероятностей этих переходов. Вероятности определяются квадратами коэффициентов Клебша-Гордона $(I_1 I_2 m_1 m_2 | I_1 I_2 m_1 - m_2)^2$. В случае Fe^{57} , где $I_2 = 1/2$, $L = 1$, они дают относительные вероятности для различных разрешенных переходов, представленные в табл. 3.3.

Наряду с полной интегральной интенсивностью, связанной с этими переходами, представляет интерес также угловое распределение. Так, для $L = 1$ переходы с $\Delta m = 0$ имеют угловое распределение $\sin^2\theta$, в точности совпадающее с угловым распределением излучения классического диполя, в то время как переходы с $\Delta m = 1$ имеют угловое распределение $1 + \cos^2\theta$ (см. табл. 3.3). Заметим, что:

Таблица 3.2

Мультипольность	L	Изменение четности	Переход
Дипольный	1	Нет	$E1$
	1	Есть	$M1$
Квадрупольный	2	Есть	$E2$
	2	Нет	$M2$

- 1) интенсивность перехода с $\Delta m = 0$ равна нулю при $\theta = 0$, т.е. вдоль магнитной оси;
- 2) сумма трех угловых функций не зависит от угла, т.е. суммарная интенсивность излучения, испускаемого при переходе между уровнями с $I = 3/2$ и с $I = 1/2$, сферически симметрична;
- 3) усредненное по сфере угловое распределение каждой компоненты дает полную относительную вероятность компоненты (среднее по сфере от $\cos^2\theta$ равно $1/3$, среднее от $\sin^2\theta$ равно $2/3$).

Таблица 3.3.

Переход	Δm	Общая относительная вероятность пере-	Угловая зависимость ³
$3/2 \rightarrow 1/2$	-1	3	$9/4(1+\cos^2\theta)$
$-3/2 \rightarrow -1/2$	+1		
$1/2 \rightarrow 1/2$	0	2	$3\sin^2\theta$
$-1/2 \rightarrow 1/2$	0		
$-1/2 \rightarrow 1/2$	+1	1	$3/4(1+\cos^2\theta)$
$1/2 \rightarrow -1/2$	-1		

Магнитное сверхтонкое взаимодействие (формула 3.12) содержит ядерный параметр – магнитный момент μ , и атомный параметр H , которые нельзя определить на опыте по отдельности. Эта дилемма анало-

³ Θ – угол между направлением магнитного поля (оси квантования) и направлением испускания γ -кванта.

гична уже встречавшейся при рассмотрении изомерного сдвига и квадрупольного расщепления.

Однако в данном случае положение является более благоприятным, так как можно приложить внешнее магнитное поле и измерить получившееся расщепление, в то время как в случае квадрупольного расщепления невозможно создать внешний градиент электрического поля. В действительности, удовлетворительный эксперимент такого рода был проведен только с Fe^{57} , так как необходимые для большинства изотопов достаточно сильные магнитные поля пока недоступны. Вообще говоря, магнитные моменты основных состояний стабильных изотопов известны из опытов по обычному парамагнитному резонансу и опытов с атомными пучками. Зная момент основного состояния и измеряя мессбауэровскую сверхтонкую структуру, можно определить как $\mu_{\text{возб}}$, так и $H_{\text{эфф}}$. Поэтому упомянутая дилемма в данном случае не возникает вообще.

§4. Комбинированные магнитное и электрическое сверхтонкие взаимодействия

Заканчивая эту главу, мы приведем некоторые полезные формулы, описывающие эффекты, связанные с одновременным действием магнитного дипольного и электрического квадрупольного взаимодействий, для случая $I = 3/2$, который применим к Fe^{57} , Sn^{119} , Tm^{169} и ряду других мессбауэровских изотопов.

Хотя гамильтониан сверхтонкого взаимодействия в самом общем случае, включающий как магнитный, так и электрический члены, легко выписывается, общего решения для собственных значений этого гамильтониана не существует. Однако в ряде частных случаев, имеющих практический интерес, существуют простые решения. Вообще говоря, из экспериментально полученного спектра нельзя определить, имеет ли место один из этих случаев. Эту информацию необходимо получить из симметрии кристалла, симметрии в точке расположения иона и магнитных свойств.

1. Аксиально симметричный тензор ГЭП с осью симметрии, параллельной H .

$$I = 3/2,$$

$$E = -g\mu_n H m_I + (-1)^{|m_I|+1/2} \frac{eqQ}{4}. \quad (3.13)$$

Все четыре магнитных подуровня смещаются квадрупольным взаимодействием на одинаковую величину (рис. 3.4).

2. Аксиально симметричный тензор ГЭП с осью симметрии, направленной под углом θ к магнитной оси.

Были проведены расчеты на ЭВМ для $I=1, 3/2, 2$ и т.д. Решение в аналитической форме отсутствует, но в случае $eqQ/\mu H \ll 1$ имеем

$$I = 3/2,$$

$$E = -g\mu_n H m_I + (-1)^{|m_I|+1/2} \frac{eqQ}{4} \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2}. \quad (3.14)$$

Заметим, что случаи, соответствующие формулам (3.13) и (3.14), не так легко различить на опыте.

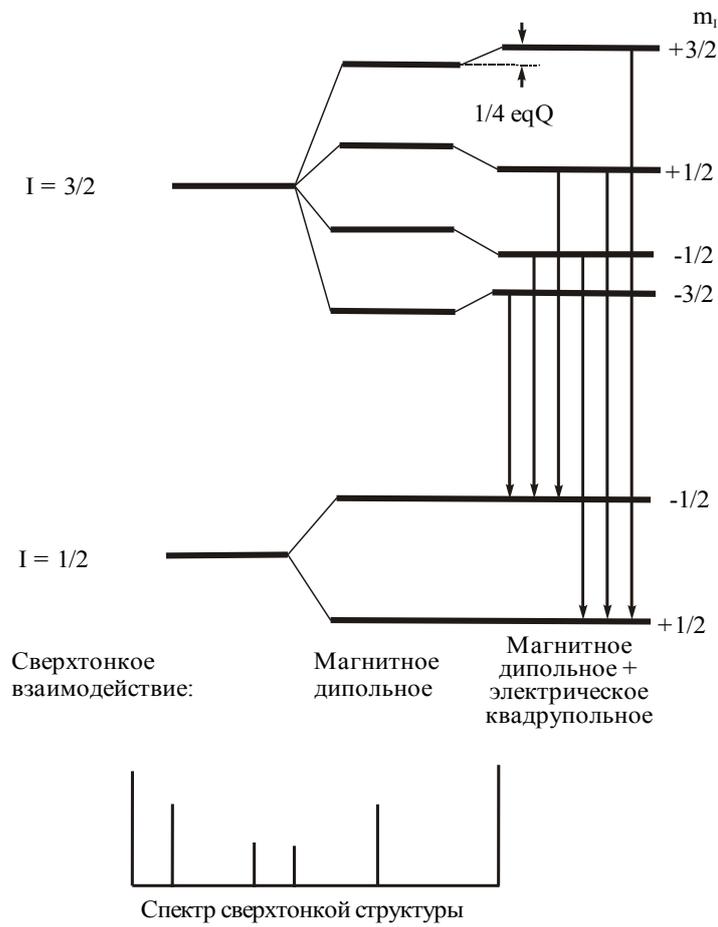


Рис. 3.4. Сверхтонкое расщепление с $I=3/2$, для случая, когда V_{zz} параллельно H

Если $Q(3\cos^2\theta - 1)/2$ заменить на Q' , то эти формулы становятся формально идентичными, и полученное значение квадрупольного момента может оказаться ошибочным, как по величине, так и по знаку. Так, в случае $\theta = \arccos(1/\sqrt{3})$ можно ошибочно заключить, что Q' равно нулю. В случае $\theta = \pi/2$ можно ошибиться в определении Q' на множитель $-1/2$. Отсюда ясно, что само по себе сверхтонкое расщепле-

ние еще не дает возможности определить квадрупольный момент, если нет независимых сведений о направлении намагниченности относительно осей симметрии твердого тела.

3. Тензор ГЭП общего вида с H , направленным вдоль одной из его главных осей.

Этот случай применим к FeF_2 , антиферромагнетику со структурой рутила (рис. 3.5.)

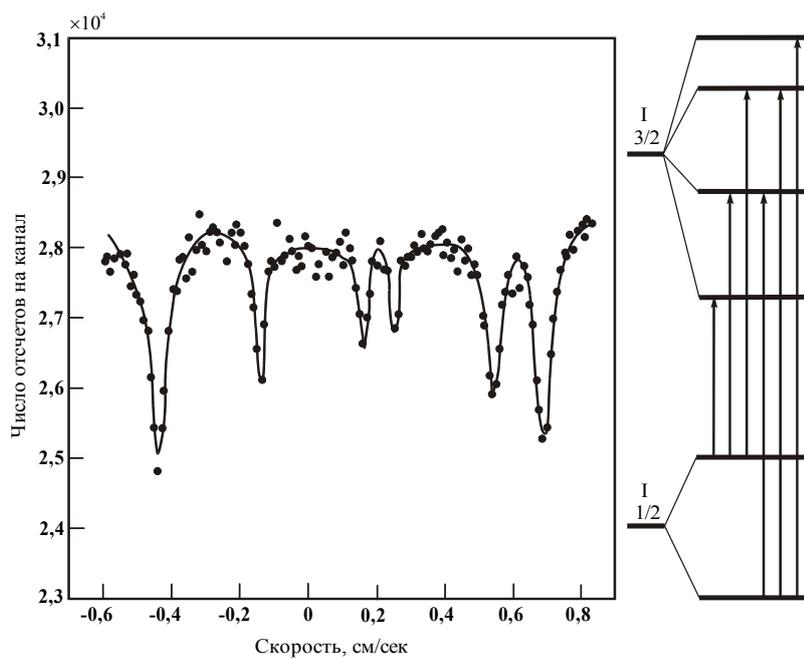


Рис. 3.5. Сверхтонкая структура в FeF_2 .

$$I=3/2,$$

$$E = \begin{cases} \frac{1}{2} g\mu_n H \pm \frac{1}{4} eqQ \left[\left(1 + \frac{4g\mu_n H}{eqQ} \right)^2 + \frac{1}{3} \eta^2 \right]^{1/2}, \\ -\frac{1}{2} g\mu_n H \pm \frac{1}{4} eqQ \left[\left(1 - \frac{4g\mu_n H}{eqQ} \right)^2 + \frac{1}{3} \eta^2 \right]^{1/2}, \end{cases} \quad (3.15)$$

Основное значение этой более сложной комбинированной сверхтонкой структуры заключается в том, что из нее можно определить знак квадрупольного взаимодействия, а это при определенных условиях позволяет найти знак квадрупольного момента ядра.

§5. Определение параметров сверхтонкого взаимодействия из экспериментальных спектров

Определение параметров вышерассмотренных взаимодействий из экспериментальных спектров является основной задачей любого эксперимента. Для хорошо разрешенных спектров, содержащих только синглет или квадрупольный дублет, не представляет сложности определение δ и ΔE_Q . При наличии магнитной СТС, когда положение линий спектра определяется всеми видами взаимодействий, удобно представить положение каждой линии в виде аддитивных вкладов всех взаимодействий.

Для удобства записи введем нумерацию линий спектра, приписав первый номер линии с максимальной отрицательной скоростью. Для

случая, когда $I_{\text{возб.}} = 3/2$ и $\mu H \gg \frac{e^2 qQ}{4}$ можно записать:

$$\begin{aligned}
V_1 &= -\alpha H + \Delta E_Q/2 + \delta, \\
V_2 &= -\beta H - \Delta E_Q/2 + \delta, \\
V_3 &= -\gamma H - \Delta E_Q/2 + \delta, \\
V_4 &= \gamma H - \Delta E_Q/2 + \delta, \\
V_5 &= \beta H - \Delta E_Q/2 + \delta, \\
V_6 &= \alpha H + \Delta E_Q/2 + \delta,
\end{aligned}
\tag{3.16}$$

Коэффициенты α , β , γ , являющиеся множителями величины магнитного поля H , должны иметь в этом случае размерность $\left[\frac{\text{мм/с}}{\text{кЭ}} \right]$,

учитывая что значение магнитного поля измеряется в кЭ.

Если ввести обозначение $\Delta_{ij} = V_i - V_j$, из системы уравнений (3.5.1) легко получить искомые параметры экспериментального спектра:

$$\begin{aligned}
H &= \frac{\Delta_{16}}{2\alpha} = \frac{\Delta_{25}}{2\beta} = \frac{\Delta_{34}}{2\gamma}, \\
\Delta E_Q &= \frac{\Delta_{12} - \Delta_{56}}{2} = \frac{\Delta_{13} - \Delta_{46}}{2}, \\
\delta &= \frac{2V_1 + V_2 + V_3 + V_4 + V_5 + 2V_6}{8}.
\end{aligned}
\tag{3.17}$$

В этих уравнениях можно использовать только наиболее интенсивные линии, положения которых могут быть оценены с достаточной точностью.

В случае полной продольной поляризации измеряемого образца, т.е. когда угол $\theta = 0$, и, следовательно, интенсивности 2-ой и 5-ой линий равны нулю, их можно просто исключить из системы уравнений (3.5.2).

Для каждого мессбауэровского изотопа коэффициенты α , β , γ рассчитываются довольно просто, исходя из схемы переходов (рис. 3.2) и знания $\mu_{\text{осн}}$ и $\mu_{\text{возб}}$. Например, для изотопа Fe^{57} :

$$\alpha = 0,016 \left[\frac{\text{мм/с}}{\text{кЭ}} \right], \beta = 0,0092 \left[\frac{\text{мм/с}}{\text{кЭ}} \right], \gamma = 0,0025 \left[\frac{\text{мм/с}}{\text{кЭ}} \right].$$

При идентификации линий в сложном мессбауэровском спектре можно воспользоваться не только первым уравнением в системе (3.5.2), но и дополнительным тождественным равенством $\Delta_{24} \equiv \Delta_{35}$, так как эти переходы определяются расщеплением основного состояния.

Глава 4. Резонансное рассеяние

Метод поглощения является более простым, и он широко применяется. Но для решения ряда вопросов метод регистрации резонансного рассеяния безотрадного излучения и сопровождающих этот процесс излучений имеет преимущество. Это в первую очередь относится к исследованию тонких пленок и поверхности толстых, «непрозрачных» для мессбаэровского излучения образцов.

Преимущество сказывается и в случае малых значений фактора f' , когда энергии мессбаэровских переходов велики. Эксперименты по рассеянию могут быть применены к специальным задачам, например для измерения слабого квадрупольного или магнитного взаимодействия, для изучения релеевского рассеяния и других явлений. Особый интерес представляет изучение таким методом когерентных эффектов.

Как известно, распад резонансно возбужденного ядра может происходить по двум каналам: переизлучение резонансного γ -кванта и через процесс внутренней конверсии, при котором наряду с конверсионными и Оже-электронами испускается также и характеристическое рентгеновское излучение.

Ниже приведены примеры таких процессов для мессбаэровских ядер Fe^{57} и Sn^{119} .

Отметим прежде всего основные особенности, важные для рассматриваемого метода. Оптимальное геометрическое расположение в экспериментах по рассеянию не является универсальным и определяется поставленной задачей.

Таблица 4.1.

**Выход фотонов различных энергий, образующихся
при распаде Co^{57} и первых возбужденных
уровней Fe^{57} и Sn^{119}**

Вид излучения	Энергия фотонов, кэВ	Интенсивность на 100 распадов		
		Co^{57}	Первый возбужденный уровень	
			Fe^{57}	Sn^{119}
$L_{\alpha} - \text{Fe}^{57}$	0,7		0,2	
$L_{\alpha} - \text{Sn}^{119}$	3,44			5
$K_{\alpha} - \text{Fe}^{57}$	6,42	54	26,3	
$\gamma_{\text{M}} - \text{Fe}^{57}$	14,41	9,55	10,8	
$\gamma_{\text{M}} - \text{Sn}^{119}$	23,87			16
$\gamma_2 - \text{Fe}^{57}$	122	85,6		
$\gamma_1 - \text{Fe}^{57}$	136	10,6		

Таблица 4.2.

Выход конверсионных и Оже-электронов

Группа электронов	Fe^{57}		Sn^{119}	
	Энергия, кэВ	Интенсивность на 100 распадов	Энергия, кэВ	Интенсивность на 100 распадов
К-конверсионные	7,3	79,3		
L-конверсионные	13,56	8	19,6	83
M-конверсионные	4,32	1,8	23,0	13
KLM Оже-	6,3	52,8		

KLL Оже-	5,4			
LMM Оже-	0,5-0,6	60	2,8	74

§1. Особенности регистрации резонансного γ -излучения

Интенсивность рассеянного γ -излучения

Пусть плоский анализируемый образец расположен под углом φ к первичному γ -излучению, которое для упрощения будем считать параллельным пучком лучей. Детектор спектрометра измеряет часть общего рассеянного излучения, распространяющегося в направлении ψ в некотором телесном угле Ω . Первичное γ -излучение проникает в глубину образца, и возникающее рассеянное излучение на пути к детектору спектрометра ослабляется в образце (рис. 4.1.).

Рассмотрим тонкий слой Δx в образце на глубине x . Если $J_\gamma(0)$ – интенсивность первичного пучка, то с учетом ослабления на пути к рассматриваемому слою Δx образца интенсивность составит

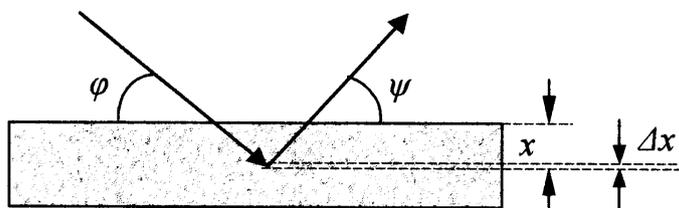


Рис. 4.1. Модель геометрии эксперимента.

$$J_\gamma(0) \cdot \exp\left[-\frac{\mu_\gamma x}{\sin \varphi}\right]. \quad (4.1)$$

Возникшее в результате резонансного рассеяния γ -излучение на пути к поверхности ослабляется. Снижение этой интенсивности выражается множителем

$$\exp\left[-\frac{\mu_{\gamma}x}{\sin \psi}\right]. \quad (4.2)$$

В этих выражениях μ_{γ} – линейный коэффициент ослабления для γ -излучения, обусловленный образцом.

Теперь можно сформулировать выражение для вклада ΔJ_{γ} , который вносит рассматриваемый слой Δx в интенсивность вне образца. Величина этого вклада пропорциональна:

- 1) интенсивности первичного γ -излучения на глубине x от поверхности образца в соответствии с (4.1);
- 2) относительной концентрации n резонансных ядер в образце;
- 3) телесному углу Ω , под которым детектор «видит» поверхность исследуемого образца площадью S ;
- 4) безотдачному фактору поглощения в образце f' ;
- 5) вероятности излучательного процесса на фоне внутренней конверсии $\frac{1}{1+\alpha}$, где α – полный коэффициент конверсии;
- 6) ослаблению резонансно-рассеянного излучения в соответствии с (4.2).

В результате получаем:

$$\Delta J_{\gamma} = J_{\gamma}(0) \cdot f' \cdot n \cdot S \cdot \frac{\Omega}{(1+\alpha)} \exp\left[-\left(\frac{\mu_{\gamma}}{\sin \varphi} + \frac{\mu_{\gamma}}{\sin \psi}\right)x\right] \cdot dx. \quad (4.3)$$

Если толщина исследуемого образца значительно превышает глубину проникновения γ -излучения в образец, т.е. $\mu_{\gamma}x \gg 1$, можно проинтегрировать (4.3) в области $0 < x < \infty$. В результате получается

$$J_{\gamma} = J_{\gamma}(0) f' \cdot n \cdot S \cdot \frac{\Omega}{(1+\alpha)} \left[\frac{1}{\frac{\mu_{\gamma}}{\sin \varphi} + \frac{\mu_{\gamma}}{\sin \psi}} \right]. \quad (4.4)$$

Отсюда видно, что регистрируемая интенсивность значительно ослаблена по сравнению с $J_{\gamma}(0)$ в основном двумя факторами: коэффициентом $1/(1+\alpha)$, являющимся характеристикой самого мессбауэровского ядра, и телесным углом Ω , задаваемым экспериментом.

Интенсивность характеристического рентгеновского излучения

Регистрация мессбауэровских спектров по характеристическому рентгеновскому излучению также представляет интерес при исследовании тонких пленок и поверхности массивных кристаллов.

Линейный коэффициент поглощения рентгеновского излучения μ_x в общем случае больше μ_{γ} , поэтому глубина анализируемого слоя будет меньше, чем при регистрации γ -излучения. Интенсивность рентгеновского излучения будет определяться разностью вероятностей конверсионного (ω_e) и оже-процессов (ω_{KLM}). Интенсивность регистрируемого характеристического излучения будет представляться как:

$$\Delta J_x = J_{\gamma}(0) \cdot f' \cdot n \cdot S \cdot \Omega (\omega_e - \omega_{KLM}) \exp \left[- \left(\frac{\mu_{\gamma}}{\sin \varphi} + \frac{\mu_x}{\sin \psi} \right) x \right] \cdot dx \quad (4.5)$$

Интегрирование для толстого образца дает:

$$J_x = J_{\gamma}(0) \cdot f' \cdot n \cdot S \cdot \Omega (\omega_e - \omega_{KLM}) \left[\frac{1}{\frac{\mu_{\gamma}}{\sin \varphi} + \frac{\mu_x}{\sin \psi}} \right] \quad (4.6)$$

Относительный вклад в общий мессбауэровский спектр, регистрируемый по рентгеновскому или γ -излучению от различных глубин

образца, можно оценить из (4.3) и (4.5) интегрируя по интересующим глубинам.

Качественно этот вклад можно оценить и по поглощению излучения. На рис. 4.2. представлены расчетные значения нерезонансного поглощения γ - и рентгеновского излучений различными матрицами для мессбауэровского изотопа ^{57}Fe . Например, для матрицы железа толщина слоя в 20 мкм ослабляет интенсивность в e раз. Следовательно, при регистрации рассеянного излучения толщина слоя, дающего основной вклад в общий мессбауэровский спектр, не превышает 10 мкм.

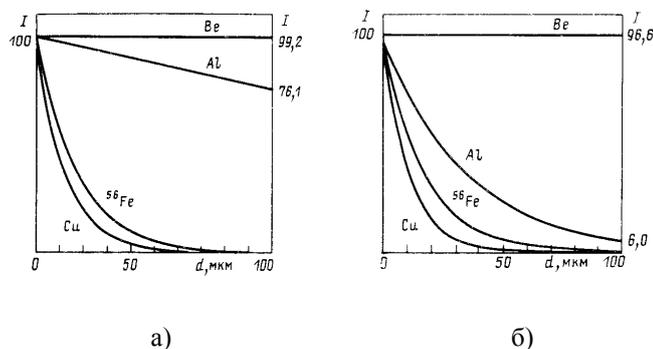


Рис. 4.2. Зависимость излучения от толщины поглотителя: а) для γ -излучения $E = 14,4$ кэВ ^{57}Co , б) для рентгеновского излучения $E = 6,47$ кэВ.

На глубину анализируемого слоя будет оказывать влияние концентрация мессбауэровского изотопа в образце. При ее увеличении будет возрастать резонансный вклад в коэффициент поглощения.

Глубина анализируемого слоя также зависит от угла падения первичного пучка γ -квантов φ и угла регистрации ψ . Уменьшая эти углы, можно довести глубину анализируемой поверхности до долей мкм.

Влияние фона

Для наблюдения безотдачного излучения в случаях малых значений f' особенно важна величина отношения эффекта к фону. В рассеянный пучок основной вклад дают мессбауэровское, релеевское и компто-

новское рассеяние. Если ограничиться случаем источника, испускающего только одну резонансную γ -линию, то при наблюдении рассеяния назад, т.е. на большие углы, комптоновское излучение не будет регистрироваться, если окно дискриминатора установлено на пик полной энергии. В этом случае отношение эффекта к фону будет определяться отношением интенсивности мессбауэровского J_M и релеевского J_R рассеяний. Для тонкого поглотителя это отношение дается выражением

$$\frac{J_M}{J_R} = 4,25 \cdot 10^{10} P(\theta) \frac{aff'}{(1+\alpha)^2 Z^3} \cdot \frac{E}{m_0 c^2}. \quad (4.7)$$

Здесь $P(\theta)$ есть фактор, учитывающий угловое распределение ядерного и релеевского рассеяния на угол θ , a – содержание резонансного изотопа, f и f' – доля безотдачного процесса для источника и рассеивателя соответственно, α – полный коэффициент конверсии, $E/m_0 c^2$ – энергия γ -кванта в единицах массы покоя электрона, Z – атомный номер. Из выражения для эффективного сечения релеевского рассеяния

$$\sigma_R = \frac{8,67 \cdot 10^{-33}}{\sin^3(\theta/2)} \left(\frac{Z \cdot m_0 c^2}{E} \right)^3 \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \text{ (см}^2 \text{ / стерадиан)} \quad (4.8)$$

видно, что это рассеяние в основном направлено вперед, и для наблюдения резонансного рассеяния выгодно брать большие углы θ . Фактически из-за вклада в фон нерезонансного излучения отношение эффекта к фону меньше расчетного значения (4.7). Этот посторонний фон может быть обусловлен главным образом комптоновским рассеянием более жесткого излучения. Поскольку фоновое излучение имеет непрерывное распределение, лучшие результаты могут быть получены с детектором, обладающим хорошим разрешением. Для случая, когда отсутствует излучение более жесткое, чем гамма-резонансное, наблюдаемый эффект может превышать фон во много раз. Заметим, что в эксперименте по поглощению отношение эффекта к фону не может быть большим, чем величина f (если регистрация производится не резонансным детектором).

Для наблюдения γ -резонанса в случаях, когда доля безотдачного излучения мала, удачным является расположение, изображенное на рис. 4.3, в котором детектируется резонансное излучение, рассеянное в основном назад и позволяющее работать с большими телесными углами для падающего и рассеянного излучений. Здесь поверхность рассеивателя имеет коническую форму. Источник располагается против рассеивателя симметрично относительно оси. За источником установлен детектор с кристаллом NaJ [Tl], защищенный от прямого пучка γ -лучей свинцовым блоком.

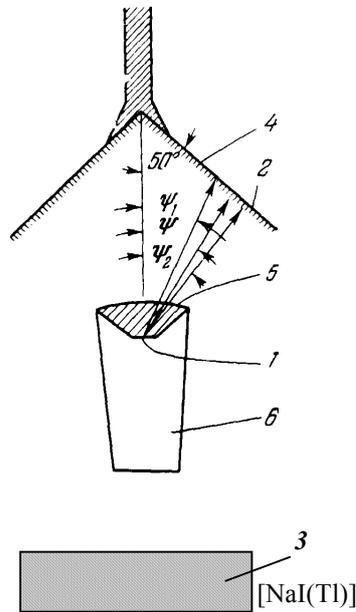


Рис. 4.3. Схема установки для измерения резонансного рассеяния на большие углы:

- 1 – источник,
- 2 – рассеиватель,
- 3 – детектор,
- 4 – алюминиевый конус толщиной 0,15 мм,
- 5 – графитовый диск,
- 6 – свинцовая защита.

При таком расположении, когда используются большие телесные углы, составляющие скорости рассеивателя в направлениях γ -лучей непостоянны, и соответствующий этому интервал доплеровских смещений приводит к существенному размытию линии. Получаемое на опыте энергетическое распределение можно аппроксимировать кривой, зависящей от геометрических параметров, и таким образом найти ширину линии Γ , скорость v , соответствующую резонансу, и интенсивность

линии J . Как и в случае поглощения, ширина наблюдаемой линии для тонкого рассеивателя дается суммой ширин линии источника и рассеивателя $\Gamma_a + \Gamma_s$, а для толстого рассеивателя ширина линии равна $\beta\Gamma_a + \Gamma_s$, где параметр β определяется из геометрии эксперимента.

§2. Интерференция ядерного резонансного и релеевского рассеяния

Безотдачное ядерное рассеяние γ -лучей в кристаллах является когерентным процессом, т. е. падающая и рассеянная волны могут интерферировать. Поэтому при таком рассеянии должны возникать дифракционные явления, аналогичные наблюдаемым с рентгеновским и другими видами излучений. Кроме того, в рассматриваемой области энергий существенно упругое релеевское рассеяние γ -лучей на электронах кристалла, которое также является когерентным, и поэтому можно ожидать интерференции между этими двумя видами рассеяния. Теория этой интерференции и первые эксперименты были выполнены Муном (1960). Им было показано, что при измерении мессбауэровских спектров регистрируемая величина интенсивности рассеянного излучения содержит кроме чисто релеевского J_R и мессбауэровского J_M и интерференционный вклад J_{int} , интенсивность которого зависит от угла θ , μ – резонансного и μ_e – релеевского коэффициентов поглощения, и от S – энергетического сдвига от центра мессбауэровской линии.

$$J_{int} = \frac{1}{2} \sin \frac{\theta}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{J(\varepsilon) d\varepsilon}{\mu_e + \frac{\mu_0}{1 + (\varepsilon + S)^2}} \quad (4.9)$$

Вычисленные формы линии J_{int} приведены на рис. 4.4. для трех различных отношений μ_0/μ_e .

В первых двух случаях видно, что при больших $|S|$ доминирующее влияние на форму линии оказывает интерференционный член. Это связано с тем, что при больших $|S|$ ядерное рассеяние изменяется приблизительно как S^{-2} , а интерференционный член меняется как S^{-1} . В случае тонкой обогащенной фольги (кривая ϵ), когда ядерным погло-

щением можно пренебречь, основную роль играет ядерное резонансное рассеяние. Поэтому для обнаружения интерференционного члена необходимо использовать сравнительно толстые рассеиватели, в которых заметную роль играет резонансное поглощение.

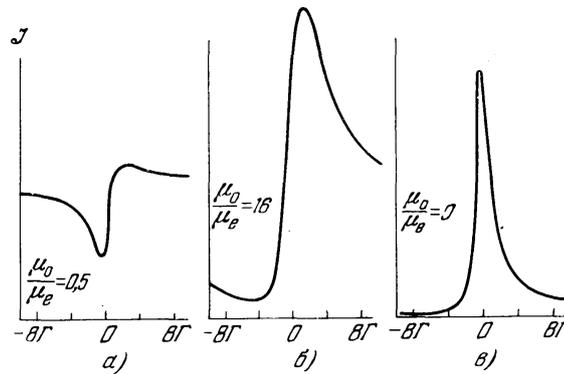


Рис. 4.4. Форма линии $J(S)$, вычисленная по уравнению (4.9).

- а) и б) для бесконечно толстого рассеивателя (вертикальная шкала одинакова);
 в) для тонкого рассеивателя (вертикальная шкала зависит от толщины рассеивателя).

По горизонтальной оси отложен сдвиг S в единицах ширины линии Γ .

Зависимость $J(S)$ от угла рассеяния θ определяется прежде всего угловыми распределениями релеевского и ядерного рассеяния. Амплитуда релеевского рассеяния, являющегося электрическим дипольным, меняется как $\cos \theta$, и это приводит к угловой зависимости интенсивности вида $(1 + \cos^2 \theta)/2$ (см. (4.8)). Амплитуда и интенсивность ядерного рассеяния для магнитного дипольного перехода (как в случае Fe^{57}) имеют те же угловые зависимости, но поляризации магнитного и электрического излучений отличаются на 90° . Можно показать, что в этом случае интерференционный член содержит фактор $\cos \theta$, и этот член не может быть обнаружен при рассеянии на угол 90° . Второе обстоятельство, обуславливающее угловую зависимость формы линии резонанс-

ного рассеяния, связано с тем, что фактор Дебая-Валлера f_R для релеевского рассеяния зависит от угла ($f_R \sim \exp(-\sin^2(\theta/2))$), а для ядерного резонансного рассеяния (в случае изотропного кристалла) такая зависимость отсутствует. (Равенство этих обоих факторов Дебая-Валлера имеет место при $\theta = 90^\circ$.)

Первые доказательства существования интерференции между релеевским и ядерным резонансным рассеянием были получены Муном (1960) с линией 14,4 кэВ и рассеивателем из железа, обогащенного изотопом Fe^{57} .

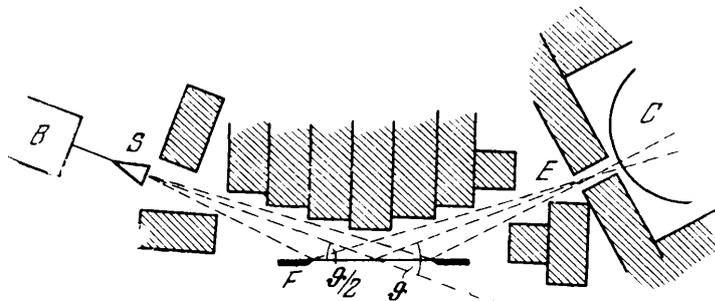


Рис. 4.5. Геометрическое расположение для исследования интерференции ядерного и релеевского рассеяния.

S – источник, F – рассеиватель, E – фокус, в котором расположена приемная щель, B – вибратор, C – детектор.

Более детальные эксперименты с рассеивателем из поликристаллического естественного железа были выполнены Блеком (1962) с расположением, показанным на рис. 4.5. Результаты измерений при трех различных углах, отвечающих брэгговским отражениям от плоскостей (332) ($\theta = 90^\circ$), (321) ($\theta = 67^\circ$) и (211) ($\theta = 43,5^\circ$), приведенные на рис. 4.4., в основном согласуются с ожидаемыми из расчета. Линия при 90° является симметричной, а при меньших углах наблюдается ожидаемая асимметрия линии. Влияние изотопного состава исследовалось с пластинкой железа, содержавшей 65% Fe^{57} . В этом случае наблюдалась также асимметрия, однако после внесения поправок на релеевское рас-

сеяние от медной подложки, на которую было нанесено железо, эффект оказался менее выраженным.

Направление асимметрии линии должно зависеть от сдвига фазы при релеевском рассеянии относительно фазы волны ядерного резонансного рассеяния. Например, асимметрия линии, изображенной на рис. 4.6., наблюдаемая с железным рассеивателем, соответствует отставанию по фазе на 90° для волны релеевского рассеяния. Для одноатомного кристалла релеевское рассеяние на брэгговский угол синфазно с релеевским рассеянием от каждого атома. Однако в сложном соединении для разных атомов элементарной ячейки изменение фазы при рассеянии может быть различным и разность фаз зависит не только от координат атомов но и от свойств самого атома. Известно, что сдвиг фазы при рассеянии на осцилляторе равен нулю, если частота излучения Ω значительно меньше частоты осциллятора Ω_0 , а при $\Omega \gg \Omega_0$ сдвиг фаз равен 180° . Поэтому может оказаться, что результирующее релеевское рассеяние сложной решетки в определенном направлении будет в противофазе с релеевским рассеянием от резонансного атома. Тогда направление асимметрии линии изменится на обратное. Таким образом, по направлению асимметрии линии при определенном брэгговском угле можно определить относительные фазы волн релеевского рассеяния на разных атомах. Это может иметь большое значение для исследований структуры сложных кристаллов.

Ядерное когерентное рассеяние γ -лучей изучалось Бернштейном (1963) еще методом полного отражения излучения, состоящего из одиночной линии источника Co^{57} , от зеркала из железа, обогащенного изотопом Fe^{57} до 91,2%. Измерялась интенсивность отраженных γ -лучей в зависимости от угла скольжения θ и скорости источника v в расположении, изображенном на рис. 4.7. Согласно классической оптике отражающая способность зеркала $R(Z)$ дается выражением

$$R(Z) = \left| \frac{1 - (1 - Z)^{1/2}}{1 + (1 - Z)^{1/2}} \right|^2. \quad (4.10)$$

Комплексное число Z определяется выражением

$$Z = \frac{N\lambda^2}{\pi\theta^2} f(0), \quad (4.11)$$

где N есть число рассеивающих центров в единице объема, λ – длина волны и $f(0)$ – комплексная амплитуда когерентного рассеяния для одного рассеивающего центра в направлении вперед.

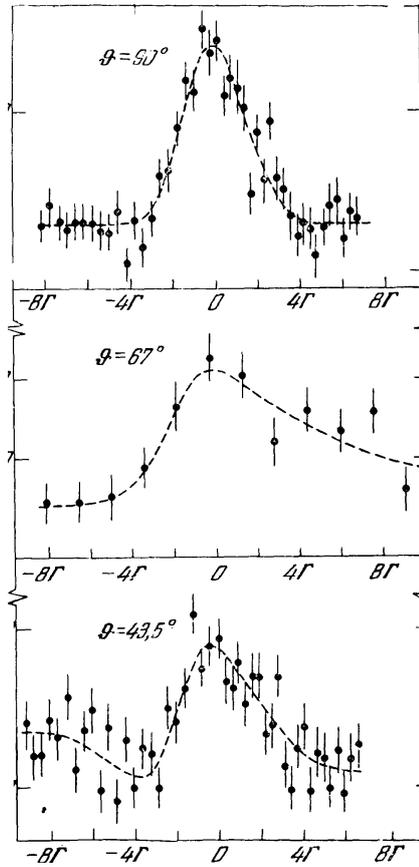


Рис. 4.6. Экспериментальные формы линий, полученные для железа естественного состава при трех углах рассеяния ($\Gamma = 0,09$ мм/сек). По горизонтальной оси отложен доплеровский сдвиг в единицах Γ .

Вклад в комплексную амплитуду $f(0)$ дает рассеяние на электронах f_e и на ядрах f_M , причем, если имеет место зеемановское расщепление, как в случае зеркала из железа, ядерное рассеяние обусловлено когерентным наложением всех шести зеемановских компонент, взятых с соответствующими фазами и интенсивностями, зависящими от разности энергии падающего излучения и энергии резонансов. Когда энергия падающего безотдачного γ -излучения проходит область резонансов, электронная часть рассеяния остается неизменной и интерференционные эффекты меняются за счет изменения ядерного резонансного рассеяния. Помимо безотдачного излучения, на зеркало падает еще излучение, сопровождаемое возбуждением или поглощением фононов в источнике, которое отражается только от электронов и дает дополнительное слагаемое в $R(Z)$, не имеющее резонансного характера.

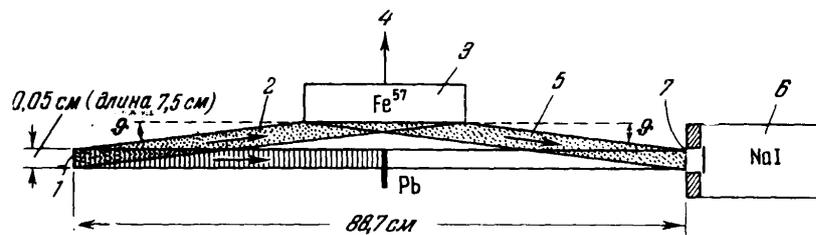


Рис. 4.7. Схема установки для измерения интенсивности γ -лучей 14,4 кэВ Fe^{57} , отраженных от зеркала из Fe^{57} .

1 – источник Co^{57} на вибраторе, 2 – падающий пучок, 3 – зеркало из Fe^{57} , 4 – юстировка для изменения угла θ , 5 – отраженный пучок, 6 – детектор, 7 – входная щель из свинца ($0,05 * 7,5 \text{ см}^2$).

В настоящее время метод отражения от зеркал, содержащих мессбауэровские ядра, используется при выделении узких мессбауэровских линий из тормозного рентгеновского излучения мощных импульсных синхротронов.

§3. Конверсионная мессбауэровская спектроскопия (КМС)

В предыдущих разделах этой главы рассматривались возможности мессбауэровской спектроскопии, основанной на регистрации электромагнитного излучения. Но мессбауэровскому переходу сопутствуют и электроны (см. табл. 4.2.). Эти электроны могут быть прямым следствием разрядки возбужденного уровня путем внутренней конверсии и связанным с этим процессом Оже-электронами, а также не связанные с резонансом фото- и вторичные электроны. Первые эксперименты по регистрации мессбауэровских спектров по электронам конверсии были проведены на ядрах Sn^{119} Митрофановым и Шпинелем (1961) и Канкелайтом (1961).

Поскольку средняя энергия электронов, достигающих детектора, зависят от глубины, на которой они образовались, в мессбауэровской спектроскопии появилась принципиальная возможность послойного, неразрушающего анализа образцов. Для детального расчета длины пробега электронов в веществе необходимо учесть все особенности его взаимодействия с этим веществом, существенно отличающимся от взаимодействия электромагнитного излучения.

Взаимодействие электронов с веществом

Взаимодействие электрона с веществом можно рассматривать в виде последовательности элементарных актов взаимодействий. В результате одного такого акта первичный быстрый электрон в среднем теряет малую долю своей энергии и/или претерпевает рассеяние.

Основные особенности взаимодействия электронов с веществом можно показать на примере следующей упрощенной модели (Лилькевист, 1979). Пусть электрон с энергией E_0 проникает в твердое тело. Между этим электроном и электронами и ионами (ядрами), образующими твердое тело существует кулоновское взаимодействие. В результате энергия налетающего электрона теряется и изменяется направление его движения (происходит рассеяние). Предполагается, что твердое тело представляет собой электронный газ, в котором на относительно

большом расстоянии друг от друга расположены малые по размеру тяжелые ядра. Элементарные акты взаимодействия в такой модели:

- рассеяние электрона на другом электроне
- генерация плазмона (волн зарядовой плотности)
- выбивание электрона из атомной оболочки
- упругое рассеяние в поле ядра

Здесь учтены далеко не все процессы взаимодействия, однако уже видно, что траектория электрона в твердом теле будет иметь сложный характер. Для электрона, прошедшего вполне определенный отрезок пути, будет существовать распределение потерь энергий (страгглинг), которое обусловлено двумя причинами. Во-первых имеются статистические флуктуации числа неупругих столкновений на этом отрезке пути. Во-вторых потери энергии в каждом столкновении также испытывают флуктуации.

Реальное твердое тело конечно отличается от рассмотренной примитивной модели, однако эта модель позволяет с удовлетворительной точностью проводить многие расчеты в КМС.

Кроме дискретного подхода существует и подход, предполагающий непрерывные потери энергии электронами. Теория торможения электронов в веществе впервые была разработана Г. Бете (1930), который действительный процесс потери энергии электроном представил в виде непрерывного процесса замедления. Используя квантовую теорию, он получил следующее выражение для скорости потери энергии электронами в простом веществе:

$$\frac{dE}{ds} = -\frac{2\pi e^4 nZ}{E} \ln \frac{1,16E}{I} \quad (4.12)$$

где n – число атомов в единице объема, I – особым образом усредненное (по всем индивидуальным процессам потерь энергии) среднее значение энергии возбуждения для атомных электронов в данном веществе. Необходимо подчеркнуть, что данное выражение характеризует потери энергии только на длине пробега ds . Эта формула не позволяет непосредственно определить потерю энергии электронами, образовавшимися на глубине x с энергией E и достигшими поверхности. Из-за

рассеяния траектория движения электрона в веществе имеет сложный характер, а тормозная способность вещества непрерывно растет по мере замедления электрона.

Детальное сравнение теории с экспериментом провели Кослет и Томас (1964-1966). Они показали, что если рассматривать всю зависимость функции прохождения $T(x)$, то ни одна из теорий не дает удовлетворительных результатов. Для электронов с не очень большими энергиями (а именно они и представляют интерес в мёссбауэровской спектроскопии) все экспериментальные параметры зависят от E_0 и Z более слабо, чем при больших энергиях электронов. Эти зависимости еще более ослабевают при энергии электронов порядка 5 кэВ. Никакие универсальные теории нельзя применять при столь низких энергиях электронов. Полученные этими авторами экспериментальные зависимости прохождения моноэнергетических электронов через фольгу из меди и золота представлены на рис. 4.8.

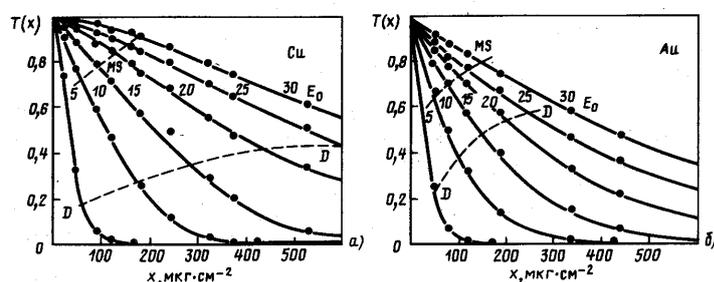


Рис. 4.8. Функции прохождения $T(x)$ моноэнергетических электронов с начальными энергиями E_0 от 5 до 30 кэВ через фольги из меди и золота.

На каждый из приведенных зависимостей легко выделить три области: вначале некоторый изгиб, затем почти линейная зависимость, которая в конце переходит в экспоненту. По мнению авторов, этим трем областям соответствуют разные виды рассеяния. В первой области преобладает кратное рассеяние, во второй – многократное, а третьей области соответствует диффузия. Пунктирная линия MS на рис. 4.8. отделяет первую область от второй, а линия DD показывает, на какой глубине

рассеяние можно рассматривать как диффузию, а ослабление потока электронов как экспоненциальное.

В качестве двух наиболее важных для нас результатов этих экспериментальных исследований выделим следующие: кривые пропускания для одинаковых начальных энергий электронов почти не зависят от Z , если толщину фольги измерять в г/см^2 , и для интересующих нас энергий электронов строгая экспоненциальная зависимость имеется только тогда, когда значительная часть электронов уже поглотится.

Существенным параметром, необходимым для различных оценок на стадии подготовки эксперимента, является длина пробега электронов. Несмотря на подобие формы кривых прохождения для разных элементов, если толщину слоя выразить в г/см^2 , имеются количественные различия при энергиях электронов 20 и более кэВ. В диапазоне энергий 5-15 кэВ с хорошим приближением можно рассчитать экстраполированную длину пробега по формуле

$$Re = kE_0^{3/2} \quad (4.13)$$

Где E_0 дается в кэВ, Re – А, а постоянная k равна 147, 103, 82 и 45 для Al, Cu, Ag и Au соответственно. Если перейти к единицам г/см^2 , то различия в значениях Re уменьшится. Бронштейн и Фрайман (1969) предлагают следующую формулу для Re с учетом Z элемента

$$Re = 6 \cdot 10^{-6} E_0^{1.4} A/\rho Z \quad (4.14)$$

Где Re выражено в см, ρ – г/см^3 и E_0 – кэВ.

Методы регистрации электронов конверсии

Возникновение КМС в значительной степени связано с применением газоразрядных пропорциональных счетчиков для регистрации электронов. Пропорциональный счетчик в КМС регистрирует все электроны с энергией приблизительно от 1 кэВ до энергии мессбауэровского перехода. Помимо высокой эффективности к электронам интересующих нас энергий пропорциональные счетчики обладают и разрешением по энергиям, что позволяет достигнуть с их помощью определенной селективности по глубине. Схема спектрометра с использованием

пропорционального детектора электронов конверсии показана на рис. 4.9.

Электроны, испущенные с поверхности изучаемого образца, взаимодействуют с газом, заполняющим чувствительный объем счетчика и ионизируют его. Ионизация продолжается до тех пор, пока энергия первичного электрона и выбитых им быстрых вторичных электронов не станут меньше потенциала ионизации молекул и атомов газовой смеси или пока электрон не покинет чувствительный объем счетчика. Электроны и ионы движутся к соответствующим электродам. Напряженность электрического поля вблизи анода такова, что каждый электрон, образовавшийся при первичной ионизации, будет создавать в этой области лавину из электронов и положительных ионов (вторичная ионизация). Число пар ионов в каждой такой лавине – коэффициент газового усиления (КГУ) – в пропорциональных счетчиках может варьироваться в широких пределах от 10 до 10^5 .

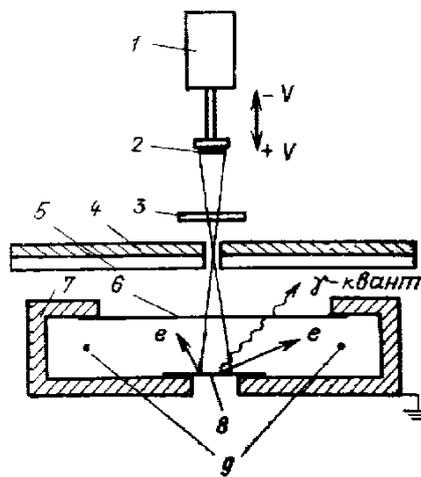


Рис. 4.9. Схема спектрометра на базе плоского пропорционального детектора с двумя анодами в виде проволоки:

1 – вибратор; 2 – мессбауэровский источник; 3 – фильтр; 4 – свинцовая защита; 5 – алюминиевая пластина; 6 – входное окно из бериллия; 7 – корпус счетчика; 8 – исследуемый образец; 9 – аноды.

Разрешение по энергии пропорциональных детекторов определяется многими факторами. Два из них являются фундаментальными и не могут быть исключены. Это статистические флуктуации числа пар ио-

нов, произведенных первичной ионизирующей частицей, и статистические флуктуации числа вторичных электронов, произведенных в лавинах, инициированных каждым первичным электроном. Разрешение зависит также от конструкции и качества изготовления счетчика, неоднородностей анодной проволоки, сродства электронов к примесям, содержащимся в газе, шумов усилителя и др. Разрешение может зависеть от режима работы счетчика, т.е. от КГУ, загрузки счетчика, скорости продувки газовой смеси и состояния рабочей поверхности нити.

Помимо пропорциональных счетчиков в КМС используют и другие типы детекторов. Из газоразрядных детекторов распространение получили плоские лавинные счетчики. В мёссбауэровской спектроскопии такие детекторы впервые были применены Вайером (1976) в основном в качестве резонансных детекторов и для работы при больших загрузках.

Наряду с развитием методик, основанных на газонаполненных счетчиках, в ряде лабораторий были развиты другие методы регистрации электронов для целей мёссбауэровской спектроскопии. Вторичные электронные умножители (ВЭУ), микроканальные пластины и электронные умножители открытого типа образуют вторую по значимости после газоразрядных детекторов группу детекторов для КМС. Все эти детекторы не имеют входных окон и предназначены для работы в вакууме. Последние обстоятельства позволяют достаточно просто конструировать спектрометры, работающие как при высоких, так и при низких температурах.

Составляющие эту группу детекторы не обладают разрешением по энергиям. Распределение импульсов по амплитудам на выходе таких детекторов соответствует распределению шумовых импульсов. Для целей мёссбауэровской спектроскопии эти детекторы оказались менее удобными, чем ВЭУ, и широкого применения не нашли.

В отличие от них ВЭУ действительно нашли широкое применение как в КМС. Используются как промышленные образцы, так и специально изготавливаемые для целей КМС. Входной диаметр ВЭУ – от одного до нескольких сантиметров. Эффективность их к электронам

низких энергий велика и достигает 90% для электронов с энергией около 300 эВ

Имеются два методических раздела в КМС, где применение ВЭУ оказалось наиболее эффективным. В первую очередь это получение КМС-спектров при низких температурах. Второй раздел – это регистрация электронов с энергиями менее 100 эВ. При этом оказывается возможным менять эффективность, прикладывая небольшие напряжения к ВЭУ.

Одна из возможных конструкций КЭМС-спектрометра для работы при гелиевой температуре представлена на рис. 4.10.

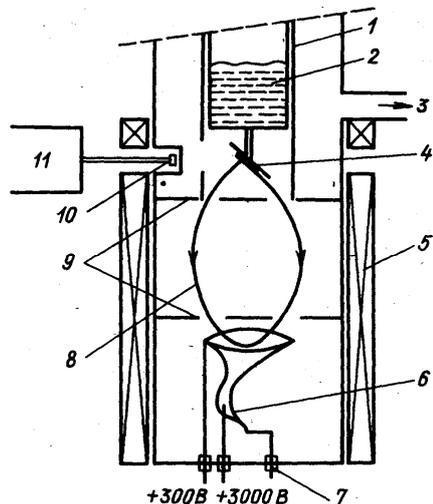


Рис. 4.10. КМС – спектрометр для работы при температурах до 4,2 К (Массанет и Давер, 1978)

1 – тепловой экран; 2 – жидкий гелий; 3 – диффузионный насос; 4 – исследуемый образец; 5 – катушки, создающие магнитное поле; 6 – ВЭУ; 7 – выходной сигнал; 8 – траектории электронов; 9 – коллиматоры; 10 – мессбауэровский источник; 11 – вибратор

Поток γ -квантов через бериллиевое окно проходит внутрь гелиевого дьюара и падает под углом 45° к поверхности образца, находящегося в тепловом контакте с гелиевым резервуаром. Часть электронов с помощью продольного магнитного поля, создаваемого током, текущим через катушки, направляется в детектор, который находится при комнатной температуре. Чтобы предотвратить попадание паров масла из диффузионного насоса в объем криостата, авторы использовали азотную ловушку. Тем не менее остатки газов, присутствующих при давлении порядка 10^{-6} мм рт. ст. в объеме криостата, конденсируются на ох-

лажденной поверхности образца. Рост слоя конденсата приводит к тому, что через двое суток работы криостата скорость счета электронов уменьшается на 30%. Недостатком такой схемы эксперимента является относительно большое расстояние образец – детектор, приводящее к малой скорости счета электронов. Достоинством ее является то, что, меняя величину тока в катушках, создающих магнитное поле, можно регистрировать электроны разных энергетических диапазонов и осуществлять таким образом селекцию по глубине.

Если ВЭУ и рассеиватель находятся при одной и той же температуре, то их можно расположить рядом и добиться за счет этого существенного увеличения скорости счета. Промышленные ВЭУ не рекомендуется использовать при низких температурах (меньших, чем 250 К). В то же время специально изготовленные образцы успешно работают в диапазоне температур от 4 до 500 К.

Глава 5

§1. Система движения мессбауэровского спектрометра

Назначение системы движения мессбауэровского спектрометра с закрепленным на ней источником γ -квантов состоит в жесткой модуляции по заданному закону энергии γ -квантов (по заданному временному закону) за счет продольного эффекта Доплера. В этом случае доплеровское смещение энергии γ -квантов при скорости v будет определяться как

$$\Delta E_v = \frac{v}{c} E_0, \quad (5.1)$$

где E_0 – энергия γ -квантов, c – скорость света.

Диапазон необходимых доплеровских скоростей для широко используемых мессбауэровских ядер не превышает ± 10 см/с. С целью обеспечения непрерывности измерений применяют возвратно-поступательный цикл движения. При этом скорость движения определяется частотой повторения цикла f и максимальной величиной смещения R :

$$v = R \cdot f. \quad (5.2)$$

Поскольку смещение источника γ -излучения относительно детектора на величину R вызывает изменение регистрируемой интенсивности излучения на величину $\Delta J \sim 1/R^2$, выбирают максимально возможную (реализуемую) частоту f для уменьшения R и связанную с ним прогиба фонового уровня мессбауэровского спектра.

По характеру движения спектрометры разделяются на 2 типа: спектрометры с постоянными скоростями и спектрометры с постоянным ускорением.

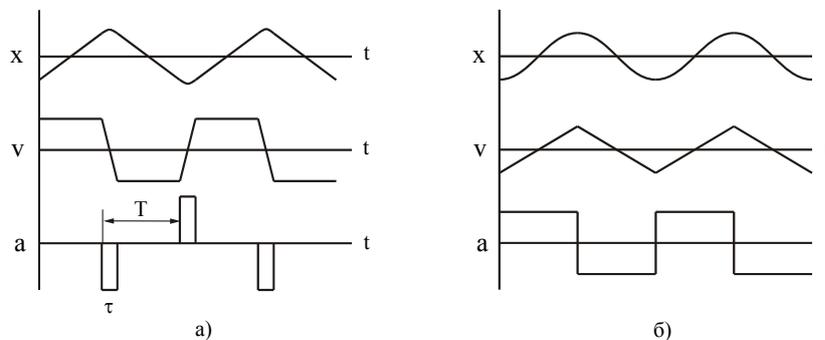


Рис. 5.1. Режимы работы спектрометров:
 а) с постоянными скоростями, б) с постоянным ускорением.

Реализация режима с постоянными скоростями может достигаться простыми средствами – два пересчетных устройства, измеряющих интенсивность регистрируемого излучения поочередно при $+v$ и $-v$, синхронно переключаемые с изменением знака скорости. Можно задать фиксированное время измерения T при одном значении величины v , и при этом весь мессбауэровский спектр будет получен по точкам за время $T_{\Sigma} = T \cdot N$, где N – число «скоростных» точек на мессбауэровском спектре. Время, затрачиваемое на переключение знака скорости, является «мертвым», при котором набор спектра не производится.

Простота реализации не может гарантировать искажения базового уровня и формы линий при временном дрейфе спектрометрического тракта мессбауэровского спектрометра.

Использование второго метода предполагает применение многоканального накопителя с большим числом каналов (реальное число разбиений всего скоростного диапазона – 256, 512, 1024 и более каналов). При частотах циклирования в несколько герц весь диапазон скоростей пробегается практически мгновенно, поэтому временной дрейф спектрометрического тракта не вызывает искажения мессбауэровского спектра. При работе в режиме с постоянным ускорением, когда график скорости отображается симметричным треугольником, сведено к минимуму мертвое время спектрометра, и появляется возможность выявлять

малейшие нелинейности в движении при складывании в накопителе мессбауэровские спектры при прямом и обратном ходе.

Современные системы движения в основном состоят из электродинамического вибратора и управляющей электронной системы. Электродинамический вибратор – устройство аналогичное механическому сдвоенному громкоговорителю. На жесткую ось, связывающую такие «громкоговорители» закрепляется источник γ -излучения. Одна из конструкций такого электродинамического вибратора, описанная Канкелайтом (1964), приведена на рис. 5.2.

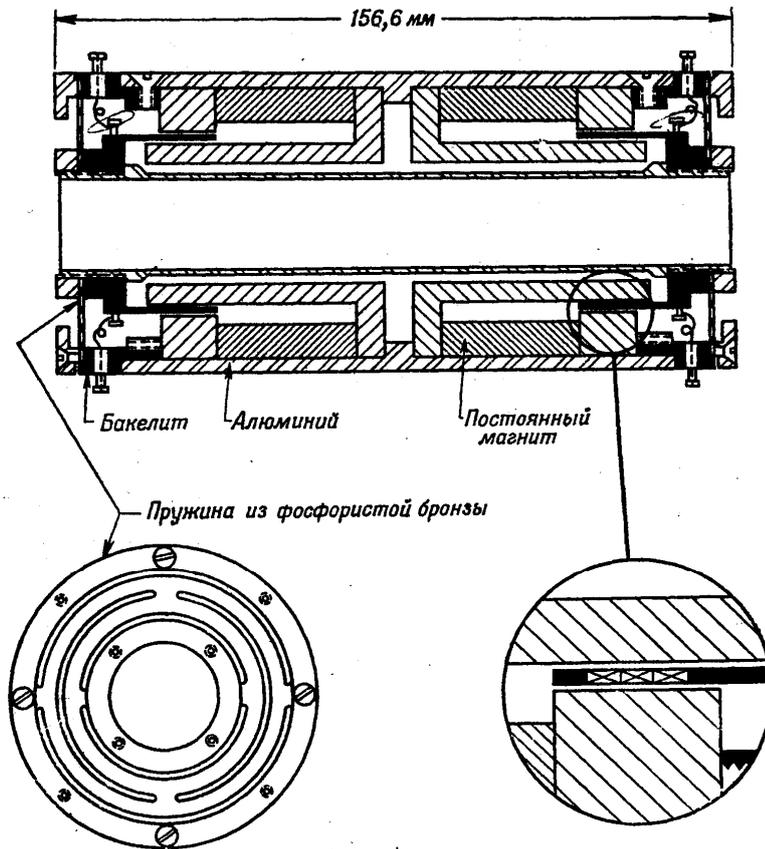


Рис. 5.2. Электродинамический вибратор.

Как видно из рисунка каждая катушка находится в своем магнитном зазоре. Подвижная часть вибратора, состоящая из катушек и штока, связывающего их, центрируется пружинами. Одна катушка используется как задающая, вторая является датчиком скорости.

Минимальное отклонение от заданной скорости движения всей подвижной части можно получить, используя принцип саморегуляции, т.е. введение *отрицательной обратной связи* между сигналом скорости и задающим опорным сигналом. Анализ такой системы в общем виде проведен в работе Канкелайта (1964). На рис. 5.3 приведена блок-схема системы с обратной связью.

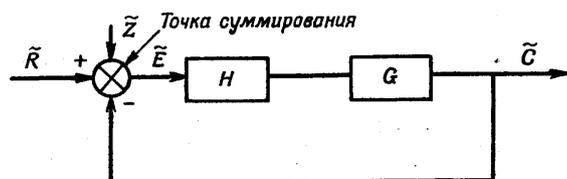


Рис. 5.3. Система с обратной связью.

Для синхронного переключения каналов накопителя с изменением скорости используются различные виды «жесткой привязки» работы электродинамического вибратора с электронной системой регистрации мессбауэровского спектра.

Опорный сигнал, например, наш сигнал треугольной формы (или температуры, или направление движения космического корабля), сравнивается в точке суммирования с сигналом, представляющим регулируемую переменную \tilde{C} , например, с нашим сигналом скорости с измерительной катушки. Разность этих сигналов – сигнал ошибки \tilde{E} – проходит через блок H , формирующий частоту и фазу, и усилителя в G раз для создания сигнала регулируемой переменной \tilde{C} . G является числом, представляющим коэффициент усиления на частоте, соответствующей нулевому сдвигу фазы. Параметры системы, которые влияют на ее частотную и фазовую характеристики, связаны с блоком H . В

нашем случае блок Н включает в себя RC-цепочки, определяющие полосу пропускания усилителя по высоким частотам и переходную характеристику вибратора. Следовательно, блок Н должен описываться сложной системой интегральных и дифференциальных уравнений. Однако преобразование Лапласа приводит ее к следующему простому виду:

$$\tilde{c} = HG\tilde{E} = HG(\tilde{R} - \tilde{c}) \quad (5.3)$$

$$\tilde{R}/\tilde{E} = 1 + HG \quad (5.4)$$

$$\tilde{c}/\tilde{R} = 1 - 1/(1 + HG) \quad (5.5)$$

Уравнение (5.5) является наиболее важным. Видно, что при $HG \gg 1$, $\tilde{c}/\tilde{R} = 1$, т.е. регулируемая переменная равна опорному сигналу R. И при этом отношение сигналов \tilde{c}/\tilde{R} не зависит от свойств блока Н.

В действительности, произведение GH нельзя сделать бесконечным: с некоторого момента увеличение G приводит к генерации на высоких частотах. Нестабильность возникает тогда, когда функция Н сдвигает фазу сигнала на 180° , и возникает положительная обратная связь – условие возникновения генерации. Источником фазового сдвига является и сам вибратор.

На практике для оптимизации GH вводят интегрирование по высоким частотам и параметры интегрирующих цепей подстраивают под конкретную конструкцию вибратора.

В качестве простого конкретного примера, иллюстрирующего действие обратной связи в системе движения мессбауэровского спектрометра, рассмотрим принципиальную схему, изображенную на рис. 5.4.

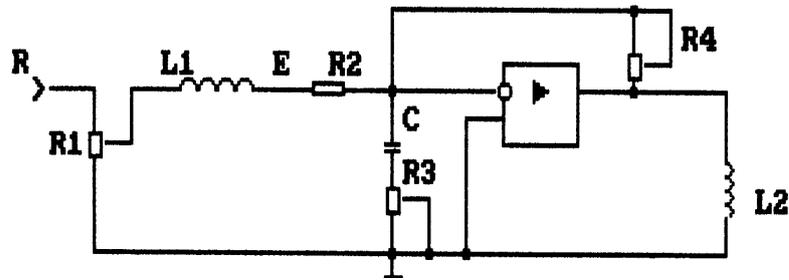


Рис. 5.4. Принципиальная схема системы движения с обратной связью.

Входной реперный сигнал R , величина которого регулируется R_1 , складывается с сигналом скорости, генерируемым измерительной катушкой L_1 . Разностный сигнал ошибки E , пройдя через интегрирующую цепочку R_2CR_3 , поступает на усилитель, коэффициент усиления которого равен R_4/R_2 . Усилитель непосредственно нагружен на рабочую катушку L_2 . Постоянная интегрирования регулируется величиной резистора R_3 .

Формирование реперного сигнала R

В приведенной принципиальной схеме отсутствует переходная емкость для отсеечения возможной постоянной составляющей в реперном сигнале. По этой причине при формировании реперного сигнала необходимо сведение постоянной составляющей к возможно минимальной величине. Аналоговые методы формирования опорного сигнала не позволяют достичь необходимого уровня и стабильности постоянной составляющей.

Современная цифровая элементная база позволила отказаться от переходных емкостей в цепи прохождения управляющего сигнала. Структура такого формирователя очень проста.

Цифроаналоговые преобразователи (ЦАП), как правило, имеют встроенный источник опорного напряжения, не уступающий по стабильности нормальным элементам Вестона. Коэффициент деления реверсивного счетчика при счете вверх и вниз может быть неравным, что

позволяет формировать опорный сигнал несимметричной формы (рис. 5.5).

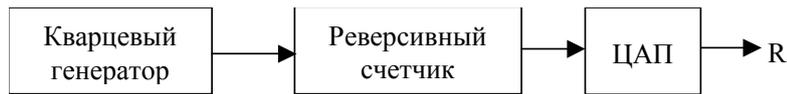


Рис. 5.5. Блок-схема формирователя опорного сигнала.

Калибровка системы движения

Для точного нахождения параметров мессбауэровских спектров необходимо знать точное соответствие между каналами многоканального накопителя и скоростью. Калибровка спектрометра по скорости проводится как абсолютными методами (в основном оптическими), так и относительными. Когда для установления связи «скорость движения – номер канала» используются мессбауэровские стандартные образцы, положение линий в которых точно измерены абсолютными методами национальными или международными метрологическими центрами. Такими калибровочными образцами, например, для изотопа Fe^{57} , являются $\alpha-Fe_2O_3$, $\alpha-Fe$ и $Na_2Fe(CN)_5NO \cdot 2H_2O$ (НПН). Ниже приводятся данные для этих образцов.

Из абсолютных методов самые точные значения положений скоростей мессбауэровских линий можно получить, используя интерферометр Майкельсона с применением призмы Кестерса (рис. 5.6.). Принцип действия основан на интерференции отраженных монохроматических лучей от двух зеркал, одно из которых (M_1) покоится, а другое закреплено на штоке вибратора (M_2). В суммарном луче, фиксируемом, есть переменная по амплитуде компонента. Интенсивность света, регистрируемая фотоумножителем:

$$J = J_0 \cos \frac{2v}{\lambda} 2\pi t, \quad (5.6)$$

где v – скорость зеркала M_2 , и λ – длина волны используемого светового пучка.

**Положение линий эталонных образцов для Fe⁵⁷
при комнатной температуре и изомерные сдвиги
для различных матриц.**

**НИИ физико-технических и радиотехнических
измерений, ГСО № 1551-79**

Сдвиг относительно НПП, мм/сек		
НПП	Fe	Fe ₂ O ₃
-0.851 +0.851	-5.051	-7.785
	-2.816	-4.069
	-0.582	-0.563
	+1.100	+2.051
	+3.336	+5.557
	+5.572	+8.836

Ranger Electronic Corporation

Сдвиг относительно НПП, мм/сек		Изомерный сдвиг относительно Fe
НПП	Fe	
Величина расщепления 1,7015±0,0002	-5,0494±0,0016	НПП -0,260±0,002
	-2,8167±0,0016	Cr -0,154±0,009
	-0,5800±0,0016	SS -0,090±0,02
	+1,1007±0,0016	Fe 0,000
	+3,3376±0,0016	Pd +0,177±0,002
	+5,5754±0,0016	Pt +0,249±0,006

$$J = J_0 \cos \frac{2v}{\lambda} 2\pi t, \quad (5.6)$$

где v – скорость зеркала M_2 , и λ – длина волны используемого светового пучка.

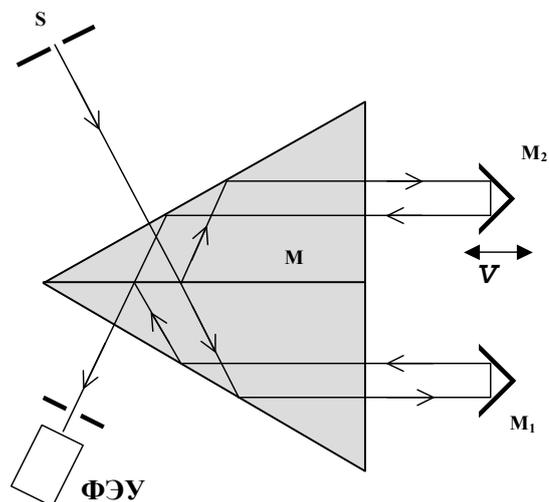


Рис. 5.6. Интерферометр Майкельсона с призмой Кестера.

С помощью такого интерферометра точность измерения скорости v может достигать долей $\mu\text{км/сек}$.

§2. Магнитные измерения

Измерения мессбауэровских спектров магнитно упорядоченных веществ во внешних насыщающих магнитных полях (продольных или поперечных) позволяют в ряде случаев уточнить особенности их магнитной структуры. В продольном магнитном поле уменьшается число резонансных линий и изменяется их интенсивность, что упрощает расшифровку сложных мессбауэровских спектров.

Для парамагнитных веществ, с симметрией кристаллической структуры ниже кубической, наложение внешнего магнитного поля позволяет определить знак градиента электрического поля.

Наложение внешнего магнитного поля является существенным фактором при исследовании фазовых переходов, в особенности фазовых переходов 2-го рода.

Для указанных целей обычно достаточным является напряженность внешнего магнитного поля порядка $1,5 \div 2,5 \text{ кЭ}$, что можно полу-

чить с помощью электромагнитов лабораторного типа, охлаждаемых водой. Особые требования к однородности магнитного поля при этом практически не возникают, поскольку ширина мессбауэровской линии, измеренная в единицах напряженности магнитного поля, составляет не менее 5 кЭ. При необходимости использовать магнитные поля с более высокой напряженностью применяют сверхпроводящие соленоиды, с помощью которых можно получить магнитные поля более 100 кЭ. Для уменьшения потерь хладагента (жидкий гелий) работают обычно в режиме «замкнутого» соленоида.

Использование магнитных полей в мессбауэровской спектроскопии сопряжено с необходимостью экранировать от этого поля электродинамический вибратор и фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) сцинтилляционного счетчика, характеристики которых чувствительны к внешнему магнитному полю. В электродинамическом вибраторе искажается передаточная характеристика датчика скорости, а ФЭУ уменьшает коэффициент усиления. По этим причинам предпочтительным является использование электромагнитов закрытого типа, рассеянные поля в которых меньше, чем у электромагнитов открытого типа. При использовании продольного магнитного поля возможно использование компенсационной катушки для ФЭУ, а в поперечных магнитных полях ФЭУ можно соединить со сцинтилляционным кристаллом длинным световодом. При этом сам ФЭУ уже оказывается за пределами магнита. Альтернативой по отношению к этим мерам защиты ФЭУ является замена сцинтилляционного счетчика пропорциональным газонаполненным детектором, практически нечувствительным к внешнему магнитному полю. При этом, естественно, уменьшается эффективность регистрации γ -квантов.

§3. Температурные измерения

Все параметры мессбауэровских спектров чувствительны к изменению температуры. Их температурная зависимость отражает внутренние характеристики кристаллов.

Важным преимуществом мессбауэровской спектроскопии является возможность осуществления экспериментов в широком диапазоне

температур – от сверхнизких до температуры плавления. Особенно ценным является возможность непрерывно, в рамках одного метода исследования, проследить процесс перехода из парамагнитного в магнито-упорядоченное состояние, что очень существенно для изучения фазовых переходов 2-го рода.

Все температурные камеры традиционно делятся на 2 класса. Выше комнатной температуры их называют температурными печами, а ниже комнатной – криостатами. Но некоторые требования к ним предъявляются одинаковые: прозрачность термической камеры к мягкому γ -излучению и создание минимального (до 0,1 К) градиента температуры на мессбауэровском образце.

В криостатах в качестве хладагента обычно используются жидкий азот ($T_{\text{кип}} = 77,35 \text{ К}$, $Q = 38,6 \text{ ккал/л}$) и жидкий гелий ($T_{\text{кип}} = 4,2 \text{ К}$, $Q = 0,68 \text{ ккал/л}$). Для достижения промежуточных температур используют охлаждение образцов парами испаряющихся хладагентов или нагреванием хладопровода, соединяющего хладагент с измеряемым образцом.

Одним из методов получения низких промежуточных температур является метод поршневого сжатия газообразного гелия с отводом тепла во внешнюю среду и охлаждения расширяющегося затем гелия за счет эффекта Томпсона-Джоуля. Этот способ получения низких температур предложил П.Л. Капица. Современные компактные установки позволяют получать температуры ниже 10 К.

Работа криостатов с жидкими хладагентами сопряжена с получением высокого вакуума для обеспечения теплоизолирующего пространства между комнатой и сосудом с жидким хладагентом. Эти требования для жидкого гелия с теплотой парообразования всего 0,68 ккал/л уже недостаточны. Здесь необходимо иметь промежуточный тепловой экран, охлажденный до температуры жидкого азота.

В дополнение к этим требованиям необходимо отметить еще одно общее для всех криостатов и температурных печей требование. Они должны быть прозрачны для мягкого γ -излучения.

В качестве термометров для различного диапазона температур используют различные преобразователи «температура – измеряемый

физический параметр». При низких температурах нашли применение угольные резисторы фирм Allen-Bradley (1К ÷ 20К) и Speer-Carbon Company (для $T < 1\text{К}$). К достоинству этих терморезисторов можно отнести малые размеры и независимость их показаний от внешних магнитных полей.

Для температур от 20К до комнатной широко используются диоды с *p-n*-переходами⁴. Такие термометры также слабо чувствительны к внешним магнитным полям, и их достоинством является линейная характеристика.

Использование термопар эффективно при высоких температурах, с понижением температуры их чувствительность падает.

⁴ Измеряется падение напряжения на *p-n*-переходе при прямом постоянном токе через диод.

Использованная литература

1. W. Kuhn, Phil.Mag. 1929, v. 8, 625.
2. P.B. Moon, Proc. Phis. Soc. 1930, v. A63, 1189.
3. И.Я. Барит, М.И. Подгорецкий, ДАН СССР, 1946, т. 54, 591.
4. R.L. Mossbauer, Z. f. Phis. 1958, v. 151, 124.
5. R.V. Pound, G.A. Rebka, Phis. Rev. Letts. 1960, v. 4, 274; Phis. Rev. Letts. 1960, v. 4, 337.
6. Lamb W. E., Jr., Phis.Rev, 1939, v. 55, 190.
7. D.A. Shirley, M. Kaplan, P. Alex. Phys.Rev. 1961, v. 123, 816.
8. S. Margulies, I. Erhman. Nucl. Instr. a. Methods. 1961, v.12, 131.
9. Г.А. Быков, Фам Зуи Хиен. ЖЭТФ, 1962, т. 43, 909.
10. Гольданский В.И., Макаров Е.Ф., Храпов В.В., ЖЭТФ, 1963, т. 44, 752.
11. King R.B., Herber R.H., Wertheim G.K., Inorg. Chem, 1964, v. 3, 101.
12. Kistner O.C., Sunyar A.W., Phis. Rev. Lett, 1960, v. 4, 412.
13. P.J. Black, P.B. Moon. Nature, 1960, v. 188, 481.
14. S. Bernstein, E.C. Campbell. Phys. Rev., 1963, v. 132, 1625
15. К.П. Митрофанов, В.С. Шпинель. ЖЭТФ, 1961, т. 40, 983.
16. E.F. Kankeleit. Z. Phys, 1961, Bd 164, 422.
17. D. Liljequist. Electron Penetration in Solids and its Application to Mossbauer Spectroscopy. Thesis: University of Stocholm, 1979, p. 64.
18. H.A. Bethe. Ann. Phys. Leipzig. 1930, v. 5, 325.
19. G. Weyer. Mossbauer Effect Methodology. N.Y. Plan. Publ. Corp. 1976, v. 10, 301.
20. O. Massanet. Sol. State Common. 1978, v. 25, 917; Nucl. Inst. Meth. 1978, v. 153, 419.
21. E. Kankeleit. Rev. Sci. Instr. 1964, v. 35, 194.
22. Шпинель В.С. Резонанс гамма-лучей в кристаллах. Наука, М., 1969, 407с.
23. Вертхейм Г. Эффект Мессбауэра. «Мир», М., 1966, 172 с.
24. Экспериментальная техника эффекта Мессбауэра. «Мир», М., 1967, 184 с.

25. Башкиров Ш.Ш., Либерман А.Б., Синявский В.И. Магнитная микроструктура ферритов. Изд. КГУ, Казань, 1978, 181 с.
26. Бронштейн И.М., Фрайман Б.С. Вторичная электронная эмиссия. «Наука», М., 1967, 407 с.
27. Литвинов В.С., Каракишев С.Д., Овчинников В.В. Ядерная гамма-резонансная спектроскопия сплавов. «Металлургия», М., 1982, 143 с.
28. Белозерский Г.Н. Мессбауэровская спектроскопия как метод исследования поверхности. Энергоатомиздат, М., 1990, 352 с.
29. Известия РАН, серия физическая, 2001, т. 65, № 7. Труды Международной конференции «Эффект Мессбауэра: магнетизм, материаловедение, гамма-оптика». Казань, 2000.

Оглавление

Глава 1	3
§1. Общие замечания.....	3
§2. Взаимодействие γ -лучей с веществом	6
§3. Форма линии испускания.....	8
§4. Полная ширина уровня и конверсия.....	10
§5. Линия поглощения	13
§6. Потери энергии на отдачу и доплеровское уширение линии.....	16
§7. Эффект Мессбауэра.....	19
Глава 2. Методика эксперимента.....	25
§1. Прохождение γ -лучей через поглотитель.....	25
§2. Динамический эксперимент	28
§3. Расчет параметров спектров поглощения	32
Глава 3. Сверхтонкая структура мессбауэровских спектров	35
§1. Изомерный сдвиг.....	36
§2. Квадрупольное взаимодействие	41
§3. Магнитная сверхтонкая структура.....	46
§4. Комбинированные магнитное и электрическое сверхтонкие взаимодействия	50
§5. Определение параметров сверхтонкого взаимодействия из экспериментальных спектров	54
Глава 4. Резонансное рассеяние.....	57
§1. Особенности регистрации резонансного γ -излучения.....	59
§2. Интерференция ядерного резонансного и релеевского рассеяния	65
§3. Конверсионная мессбауэровская спектроскопия (КМС).....	71
Глава 5.....	79
§1. Система движения мессбауэровского спектрометра.....	79
§2. Магнитные измерения.....	87
§3. Температурные измерения.....	88
Использованная литература	91

Для заметок

