

Эффект Мессбауэра

Д. А. Ларин

1 Физика явления

1. Резонансное поглощение. Случай свободных атомов

Рассмотрим две одинаковые среды, одна из которых излучает энергию колебательного движения, а вторая это излучение поглощает. В таком случае она сама становится источником излучения, т.е. наблюдается эффект резонансного поглощения.

Для примера можно взять два камертона, настроенных в резонанс, т.е. имеющих одинаковую собственную частоту (акустический резонанс), или два одинаковых атома (резонансное поглощение света). Именно этот эффект в 1904 году наблюдал Р. Вуд.

Используя в качестве источника света возбужденные пары натрия в одном объеме, он выделил желтую линию и направил на другой объем с парами натрия, в результате чего второй объем стал испускать желтое свечение во все стороны. Другими словами, атомы натрия поглотили излучение с данной длиной волны, перешли в возбужденное состояние и начали сами излучать. Все это было возможно в силу совпадения уровней энергии поглотителя и излучателя.

Переходы между уровнями энергии в ядре также приводят к излучению и поглощению квантов электромагнитного излучения, однако уже большей энергии, которые называют гамма-квантами (ГК). Ожидалось явление резонансного поглощения и для гамма-квантов, но долгое время не удавалось наблюдать это явление.

Рассмотрим причины. И при излучении, и при поглощении имеет место явление отдачи, когда некоторая часть энергии ΔE_R передается ядру, в результате чего энергия испущенного гамма-кванта оказывается меньше энергии перехода. Как известно, поглощение такого кванта уже невозможно, если линии испускания и поглощения не перекрываются или перекрываются слабо. Для оптической области смещение этих линий оказывается незначительным по отношению к ширине линий, поэтому резонансное поглощение наблюдается. В случае ГК перекрывание крайне мало, а при больших энергиях пропадает вовсе, в результате чего резонансное поглощение для свободных атом не наблюдалось.

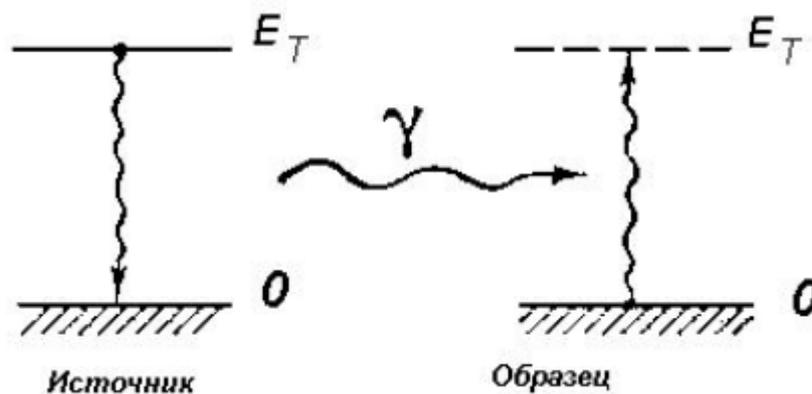


Рис.1 Резонансное поглощение гамма-кванта.

Если бы линии излучения и поглощения были бесконечно узкими, то при любом их смещении резонансное поглощение не наблюдалось бы. Учет ширины спектральной линии изменяет ситуацию.

Рассмотрим детально процесс испускания и поглощение ГК свободными покоящимися ядрами. Пусть ядро массы M находится в возбужденном состоянии с энергией возбуждения E_0 . При распаде будет испускаться ГК с энергией E_γ и импульсом $p_\gamma = E_\gamma / c$. Можно было бы ожидать с большой вероятностью резонансное поглощение ГК таким же тождественным ядром, только находящимся в основном состоянии. Однако в силу отдачи, энергия ГК оказывается меньшей, чем энергия возбуждения. Если кинетическая энергия ядра отдачи равна R , то энергия гамма-кванта оказывается равной

$$E_\gamma = E_0 - R \quad (1)$$

т.е. на величину R меньшую, чем необходимо для возбуждения на уровень E_0 .

Поскольку импульс ядра отдачи равен импульсу ГК p_γ , то

$$R = \frac{p_\gamma^2}{2M} = \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2} = \frac{(E_0 - R)^2}{2Mc^2} \quad (2)$$

Примем во внимание, что $R \ll E_0$, равенство (2) превращается в

$$R = E_0^2 / 2Mc^2 \quad (3)$$

Энергия отдачи R мала в сравнении с энергией перехода E_0 , однако велика по отношению к естественной ширине возбужденного состояния Γ .

$$\Gamma \times \tau \approx \hbar \quad (4)$$

где τ - время жизни возбужденного уровня.

Для примера рассмотрим ядро ^{57}Fe с энергией ГК 14.4 кэВ. Время жизни соответствующего уровня 100 нс, что соответствует ширине $\Gamma \approx 5 \times 10^{-9}$ эВ. В этом случае $R = 2 \times 10^{-3}$ эВ, т.е. $\frac{R}{E_0} \sim 10^{-7}$. Поскольку

$$R \gg \Gamma \quad (5)$$

то основное условие резонанса нарушается, и эффективное сечение резонансного поглощения обращается практически в нуль.

Отметим, что в процессе поглощения ядро также испытывает отдачу, поэтому полный сдвиг между линиями поглощения и испускания составляет $2R$. В силу (5) и сдвига на величину $2R$ резонансное поглощение ГК на свободных покоящихся ядрах по схеме на рисунке 1 становится невозможным.

Также в реальных условиях следует учитывать изменение энергии ГК за счет теплового движения. Если ядро имеет скорость V в направлении испускания ГК, то, в силу эффекта Доплера, его энергия изменится на величину:

$$\Delta E_\gamma = E_\gamma \times \frac{V}{c} \quad (6)$$

Доплеровское уширение линии задается формулой:

$$\Delta_D = 2\sqrt{\Delta E_R k_B T} = 2\sqrt{R k_B T} \quad (7)$$

где k_B - постоянная Больцмана, T - температура.

Таким образом, добившись больших скоростей движения атомов (десятки и сотни м/с), можно добиться восстановления условия резонанса. При не очень низких температурах можно принять, что функция распределения скоростей теплового движения соответствует максвелловскому распределению.

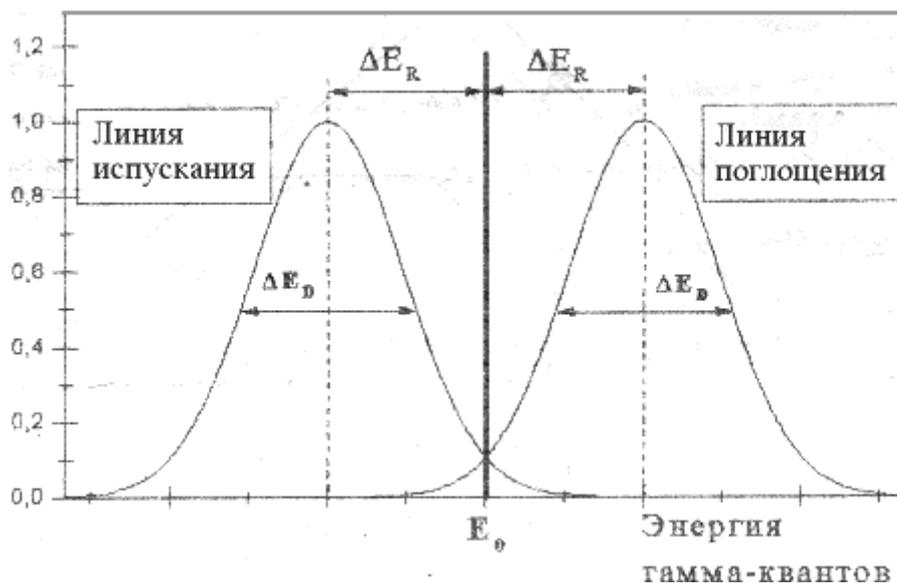


Рис 2. Схематическое изображение перекрытия линий испускания и поглощения вследствие доплеровского уширения, связанного с тепловым движением атомов.

Как правило, перекрытие линий мало, однако его можно увеличить, если сообщить ядрам источника поступательную скорость в направлении

к поглотителю (механическим путем или используя отдачу в ядерных реакциях).

Меняя скорость источника, можно было бы изучать зависимость эффективного сечения резонансного сечения от энергии испущенного ГК. Но такой способ оказывается непригодным для изучения сверхтонкой структуры, поскольку энергия доплеровского уширения много больше энергии сверхтонкого взаимодействия.

2. Эффект Мессбауэра

Мы рассмотрели случай свободных атомов и ядер, однако если ядра атомов входят в состав твердого тела, то картина резко меняется, будучи обусловленной коллективным характером элементарных возбуждений в твердом теле.

При испускании ГК импульс отдачи по-прежнему передается излучающей системе, но теперь это приводит к изменению состояния не отдельного ядра, а большого количества ядер, входящих в состав твердого тела. В кристалле атомы связаны между собой, поэтому энергия отдачи превращается в энергию колебательного движения всей кристаллической решетки. Известно, что колебания кристаллической решетки квантуются. Квант колебаний энергии $\hbar\omega$ и с волновым вектором k называется фононом. Поэтому испускание ГК в твердом теле сопровождается испусканием или поглощением фононов различных энергий. Эти процессы носят вероятностный характер.

Если энергия отдачи R меньше средней энергии фононов, характерной для данной кристаллической решетки, то возможными становятся процессы, в которых испускание ГК происходит без испускания или поглощения фонона. Тогда в таких процессах импульс отдачи передается всему кристаллу. Масса кристалла бесконечно велика по сравнению с массой отдельного атома, поэтому кинетическая энергия, сообщаемая кристаллу в результате отдачи, пренебрежимо мала. В результате этого энергия ГК, в процессе излучения без испускания фононов, точно равна энергии гамма-перехода. Вероятность такого перехода без отдачи и является вероятностью эффекта Мессбауэра. Важно отметить, что при испускании или поглощении ГК внутренняя энергия кристалла не меняется, квантовое состояние остается таким же, что и изначально.

Колебательное тепловое движение атомов в твердом теле – сложный процесс, однако можно рассмотреть кристалл как единую квантовую систему, составленную из множества гармонических осцилляторов.

Гамильтониан, описывающий движение ядра массы M в потенциале одномерного осциллятора, имеет вид:

$$H = \frac{p^2}{2M} + \frac{M\omega^2 x^2}{2} \quad (8)$$

где ω – угловая частота колебаний. Энергетический спектр эквидистантный.

$$E_n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega \quad (9)$$

где n – целое число.

Повторим, что квант колебательной энергии $\hbar\omega$ в теории динамики кристаллической решетки отождествляется с фононом, поэтому переход осциллятора в более высокое возбужденное состояние соответствует рождению одного или нескольких фононов (число, равное разности конечного и начального значений $n_f - n_i$). Очевидно, что эффект Мессбауэра - бесфононный процесс, т.е. $n_f = n_i$.

Относительная интенсивность несмещенной линии гамма-спектра определяется вероятностью испускания гамма-кванта без отдачи, т.е. вероятностью эффекта Мессбауэра. Вероятность эффекта Мессбауэра, f , задается следующим выражением:

$$f = \exp\left(-\frac{E_\gamma^2 \langle x^2 \rangle}{\hbar^2 c^2}\right) \quad (10)$$

где $\langle x^2 \rangle$ - среднеквадратичное смещение ядра (при тепловом движении) в направлении испускания кванта.

Из выражения (10) следует, что вероятность эффекта Мессбауэра быстро убывает при увеличении энергии гамма-кванта и температуры твердого тела, поскольку $\langle x^2 \rangle$ при повышении температуры всегда возрастает. При низких температурах вероятность эффекта Мессбауэра достигает максимально возможного значения:

$$f = \exp\left(-\frac{3R}{2k_B\theta_D}\right) = \exp\left(-\frac{3E_\gamma^2}{2Mc^2k_B\theta_D}\right) \quad (11)$$

где θ_D - температура Дебая, которая характеризуют упругие свойства конкретной кристаллической решетки.

В настоящее время эффект Мессбауэра наблюдался для 73 изотопов 41 элемента. В соответствии с выражениям (10) и (11) для регистрации эффекта Мессбауэра подходят гамма-переходы с энергиями, меньшими 100 кэВ. Для гамма-переходов с энергиями меньшими 30 кэВ вероятность эффекта Мессбауэра остается достаточно большой в широком температурном диапазоне. Например, для ядра ^{57}Fe измерения возможны при достаточно высоких температурах вплоть до 1000°C , при низких температурах вероятность эффекта может достигать значения $f=0,9$. Для больших энергий гамма-квантов измерения необходимо проводить при

низких температурах. В частности, для ядра ^{197}Au ($E_\gamma = 77.3 \text{ кеВ}$) $f=0,1$ только при гелиевых температурах.

Изотоп	^{57}Fe	^{119}Sn	^{125}Te	^{151}Eu
E_γ , кэВ	14,41	23,9	35,5	21,5
$T_{1/2}$, нс	98,8	17,9	1,48	9,7
I_0	1/2	1/2	1/2	5/2
I_1	3/2	3/2	3/2	7/2
c , %	2.14	8.56	6.99	47.8

Таблица 1. Основные мессбауэровские изотопы.

E_γ - энергия мессбауэровского гамма-перехода, $T_{1/2}$ - период полураспада мессбауэровского уровня, I_0 - спин основного состояния, I_1 - спин 1-го возбужденного состояния, c - естественное содержание изотопа.

2 Мессбауэровский спектр. Мессбауэровская спектроскопия

Форма спектральной линии играет важную роль в спектроскопии. В реальных условиях источник или поглотитель излучения (ядро, атом, молекула) находится в среде. Внешние поля приводят к изменению формы линии и ее параметров - положения, амплитуды, ширины. Эти параметры являются важным источником информации о свойствах среды.

Изолированный затухающий осциллятор излучает линию в узком спектральном интервале. Контур линии описывается формулой:

$$I(E) = \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{(E-E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (12)$$

где E_0 - энергия в максимуме интенсивности, соответствующая энергии перехода, а Γ - ширина линии (ширина на половине высоты). Выражение (12) описывает лоренцеву форму линии, а ширина ее Γ - естественную ширину. Однако если сам осциллятор и приемное устройство излучения подвергаются некоторым независимым случайным возмущениям, то форма линии в этом случае гауссова:

$$I(E) \sim \exp\left(-\frac{E^2}{2\sigma^2}\right) \quad (13)$$

В эффекте Мессбауэра форма линии и функция энергии для радиоактивного источника и поглотителя является лоренцевой. Мессбауэровский спектр представляет зависимость числа импульсов от скорости. Для тонких поглотителей форма линии не меняется, оставаясь лоренцевой для скоростного спектра. Мессбауэровский спектр в этом случае описывается следующей формулой:

$$I(\nu) = N_{\infty} \left[1 - \frac{\varepsilon \times \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{(E_{\gamma} \frac{\nu}{c})^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \right] \quad (14)$$

где N_{∞} - счет при больших скоростях движения, когда резонансное поглощение отсутствует, ε - амплитуда линии. $\varepsilon = K f_s t_{\text{эф}}$, здесь K - доля мессбауэровских гамма-квантов, соответствующих переходу $I_1=3/2 \rightarrow I_0=1/2$, f_s - вероятность эффекта Мессбауэра в материале источника, $t_{\text{эф}}$ - эффективная толщина поглотителя, $\Gamma = \Gamma_s + \Gamma_a$ (Γ_s - ширина линии испускания, Γ_a - ширина линии поглощения).

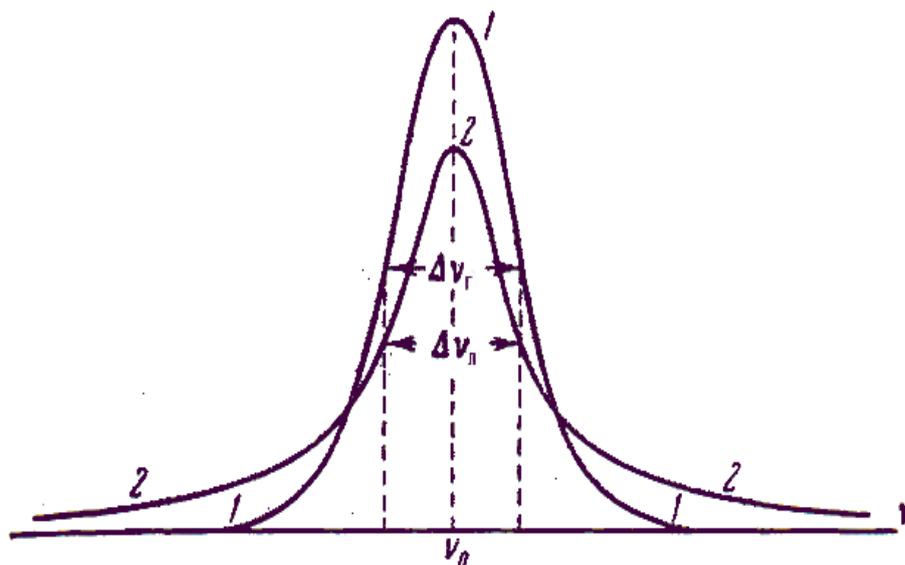


Рис. 3 Лоренцева (2) и гауссова (1) формы спектральных линий.

Для тонкого поглотителя линия мессбауэровского спектра имеет ширину, равную сумме ширин линии испускания источника и линии поглощения поглотителя, т.е. удвоенной естественной ширине мессбауэровского уровня.

Амплитуда линии, ε , пропорциональна произведению вероятностей эффекта мессбауэра в источнике и поглотителе и пропорциональна толщине поглотителя. При увеличении толщины поглотителя ширина линии возрастает, а форма линии отклоняется от лоренцевой. При больших t величина поглощения слабо зависит от толщины, что делает использование толстых поглотителей в мессбауэровской спектроскопии нецелесообразным.

Экспериментальные установки, предназначенные для измерения мессбауэровских спектров, называются мессбауэровскими спектрометрами. Они обеспечивают движение источника или поглотителя с заданной скоростью и регистрацию интенсивности потока ГК. Например, для

мессбауэровского гамма-перехода в железе с $E_0=14.41$ кэВ ширина $\Gamma \approx 5 \times 10^{-9}$ эВ, и соответствующая скорость из (6) близка к 0,1 мм/с.

Помимо измерения энергий перехода между возбужденными уровнями в атоме, мессбауэровская спектроскопия позволяет наблюдать большой круг различных эффектов, обусловленных малыми размерами ядер. Ядра атомов находят под влиянием сильных магнитных и электрических полей, создаваемых окружающими их электронами. В силу малых размеров ядер, эти поля могут больше тех, которые мы способны создать в экспериментальных условиях. Взаимодействие ядер с этими полями называется сверхтонким взаимодействием, которое ответственно за сверхтонкую структуру оптических спектров. Изучение этих явлений является крайне важным для измерения электромагнитных моментов атомных ядер.

Можно выделить несколько наиболее важных типов сверхтонкого взаимодействия: электрическое квадрупольное и магнитное дипольное. Первое ответственно за взаимодействие квадрупольного электрического момента ядра с градиентом электрического поля, второе – за взаимодействие магнитного момента ядра с внутренним магнитным полем. Оба этих взаимодействия приводят к расщеплению ядерного уровня на несколько подуровней.

Магнитная сверхтонкая структура

Запишем гамильтониан магнитного сверхтонкого взаимодействия:

$$H = -g\mu_N \vec{I} \times \vec{B} \quad (15)$$

где g - ядерный g -фактор, μ_N - ядерный магнетон, I - спин ядерного состояния, B - магнитное поле.

Примем направление магнитного поля за ось квантования:

$$H = -g\mu_N I_z B \quad (16)$$

Отсюда энергия сверхтонкого взаимодействия:

$$E_M(m) = -g\mu_N B m \quad (17)$$

где m - магнитное квантовое число, принимающее $(2I+1)$ значений от -1 до $+1$.

Расстояние между соседними зеемановскими уровнями:

$$\Delta E_M = -g\mu_N B = \mu B / I, \quad (18)$$

где μ - магнитный момент ядра.

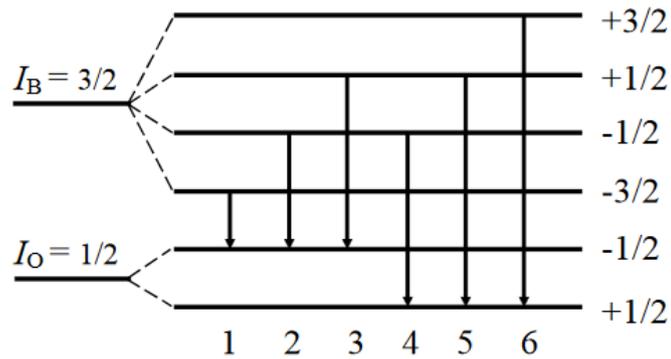


Рис. 4 Магнитное сверхтонкое расщепление и разрешенные переходы.

Квадрупольное взаимодействие

Гамильтониан этого взаимодействия имеет вид:

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} \left[3I_z^2 - I(I+1) + \frac{\eta}{2} (I_+^2 + I_-^2) \right] \quad (19)$$

где q - градиент электрического поля (ГЭП), Q - ядерный квадрупольный момент, I - спин ядра, I_i - проекции оператора ядерного спина ($I_{\pm} = I_x \pm iI_y$), η - параметр асимметрии тензора ГЭП:

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \quad (20)$$

где V_{ij} - вторые производные от электростатического потенциала в области ядра.

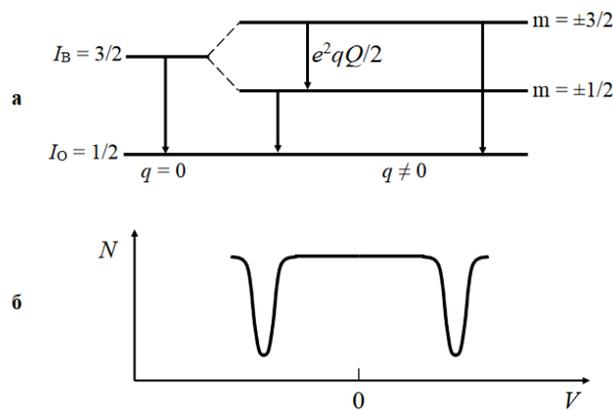


Рис.5 Переходы между подуровнями (а) и вид мессбауэровского распределения (б).

Применение эффекта Мессбауэра

Изучение сверхтонких взаимодействий имеет очень большое значение в ядерной физике и в физике твердого тела, поскольку этот эффект лежит в основе различных методов измерения электромагнитных моментов ядер. Эффект Мессбауэра позволяет наблюдать сверхтонкое взаимодействие, проявляющееся в расщеплении ядерного уровня на подуровни, в силу огромной точности измерений, намного превосходящую точность разрешения традиционных гамма-спектрометров, сцинтилляционных и газовых спектрометров, а также полупроводниковых детекторов. Также этот эффект применяется в химии, в частности для определения химических сдвигов и квадрупольного расщепления, и в биологии при анализе свойств Fe-содержащих групп в белках.

Подведем итог.

Ядерная физика:

- Наблюдение сверхтонкой структуры;
- Определение электромагнитных моментов ядер;
- Определение времен жизни возбужденных состояний.

Физика твердого тела:

- Магнитная структура;
- Магнитные свойства.

Химия:

- Химический сдвиг;
- Квадрупольное расщепление.

Биология:

- Анализ свойств Fe-содержащих групп в белках.

3 Эксперимент Паунда и Ребки

Эксперимент Паунда и Ребки – проверка замедления хода времени в поле тяготения (экспериментальное подтверждение существования гравитационного красного смещения).



Для проверки этого эффекта в 1960-м году сотрудник Гарвардского университета Роберт Паунд и его аспирант Глен Ребка поставили эксперимент, заключающийся в определении разности темпа хода времени в разнесенных по высоте точках. В одной точке находился источник излучения, в другой - приемник. Разность измеренных частот в этих точках указывает на разность хода времени в этих точках. В качестве излучателя гамма-квантов с энергией $E_0 = 14.41$ кэВ использовался ^{57}Fe . Точки были разнесены на высоту в 22.5 метра по вертикали. Соответственно, при точном совпадении частот наблюдалось бы резонансное поглощение ГК.

Согласно ОТО, при переносе приемника вниз в точку с большим гравитационным потенциалом, частота, на которую он был настроен, должна уменьшаться с точки зрения наблюдателя. Следовательно, источник и приемник выходят из резонанса. Однако эффект в слабом гравитационном поле Земли очень мал, поэтому обнаружение наталкивается на экспериментальные трудности. В частности, проблемой является доплеровский сдвиг частот, который присутствует даже в случае отсутствия гравитационного красного смещения. Поэтому в эксперименте использовался открытый в 1858-м году эффект Мессбауэра, обеспечивающий поглощение импульса отдачи при испускании и поглощении фотона не отдельным ядром, а всем кристаллом.

Произведем некоторые рассуждения. Если считать, что излучение волны с частотой ν происходит в момент, когда скорость источника равна нулю, то спустя время $\delta t = \frac{H}{c}$, когда волна достигнет приемника, ее скорость будет $v = g\delta t = gH/c$. Вследствие эффекта Доплера $\frac{\delta\nu}{\nu} = \frac{v}{c}$, а сдвиг с учетом движения в поля тяжести Земли приведет к итоговому сдвигу частоты

$$\frac{\delta\nu}{\nu} = -\frac{gH}{c^2} \quad (21)$$

В эксперименте относительное изменение частоты должно было составлять по формуле (21) $-2,46 \times 10^{-15}$. Абсолютный сдвиг энергии для гамма-квантов ^{57}Fe с энергией $E_0 = 14,41$ кэВ составлял при этом всего $3,54 \times 10^{-11}$ эВ.

Точности, имеющейся у Паунда и Ребки аппаратуры, не хватало для таких измерений. Естественная ширина самого распадающегося уровня $\Gamma = \hbar/\tau = 4,6 \times 10^{-9}$ эВ, обусловленная его конечным временем жизни ($\tau = 100$ нс), была на два порядка больше, чем ожидавшийся эффект. Тогда исследователи придумали остроумный приём для повышения точности измерений сдвига частоты: они догадались двигать источник фотонов вверх и вниз со скоростью $v_0 \cos \omega t$, где ω было некоторой постоянной частотой, несколько десятков герц, а v_0 было подобрано так, чтобы доплеровский сдвиг частоты от него намного превышал предполагаемый гравитационный сдвиг.

Источником в эксперименте была железная фольга толщиной 15 мкм с внедрённым в неё кобальтом-57 активностью около 0,4Ки, при распаде которого путём е-захвата (период полураспада 272 дня) возникало железо-57 в возбуждённом состоянии с энергией 14,4 кэВ. Источник был помещён на подвижный элемент пьезодинамика, на который подавался синусоидальный сигнал звуковой частоты 50 Гц. Данные снимались в течение каждой четверти периода (5 мс) вокруг момента максимальной скорости источника. Кроме того, источник был помещён на гидравлическом поршне, который обеспечивал поступательное равномерное перемещение источника к поглотителю (или от него) со скоростью около $6 \cdot 10^{-4}$ см/с. Между источником и поглотителем располагалась труба диаметром 40 см из пластиковой плёнки, наполненная гелием под атмосферным давлением, для устранения поглощения гамма-квантов в воздухе. Железо-57 было выбрано благодаря тому, что с ним можно работать при комнатной температуре, а также благодаря большому периоду полураспада источника (^{57}Co) и высокой интенсивности гамма-линии.

В результате теплового движения релятивистский эффект Доплера при разности температур источника и поглотителя в 1°C даёт относительный сдвиг частот $\frac{\langle v^2 \rangle}{2c^2}$ составил $2,20 \cdot 10^{-15}$, практически равный ожидаемому общерелятивистскому эффекту. Поэтому пришлось измерять эти температуры и учитывать их разность. Лишь после этого был получен окончательный результат для гравитационного смещения частоты: $\frac{\delta\nu}{\nu} = -(2,57 \pm 0,26) \times 10^{-15}$ в пределах ошибок измерения совпадавший с теоретическим предсказанием ОТО.

1. <http://prac-gw.sinp.msu.ru/lsp/Lab18.pdf>
2. http://nuclphys.sinp.msu.ru/mirrors/1998_8.pdf
3. https://ru.wikipedia.org/wiki/%D0%AD%D1%84%D1%84%D0%B5%D0%BA%D1%82_%D0%9C%D1%91%D1%81%D1%81%D0%B1%D0%B0%D1%83%D1%8D%D1%80%D0%B0
4. https://ru.wikipedia.org/wiki/%D0%AD%D0%BA%D1%81%D0%BF%D0%B5%D1%80%D0%B8%D0%BC%D0%B5%D0%BD%D1%82_%D0%9F%D0%B0%D1%83%D0%BD%D0%B4%D0%B0_%D0%B8_%D0%A0%D0%B5%D0%B1%D0%BA%D0%B8
5. kpfu.ru/docs/F1636266496/MOS_zd.DOC