

# 穆斯堡尔 $\gamma$ 射线的极化效应及其应用

杨燮龙 顾元吉

孙小铎

(华东师范大学)

(上海教育学院)

**摘要:** 本文概要介绍了穆斯堡尔 $\gamma$ 射线极化效应的基本理论、极化 $\gamma$ 射线产生的方法和有关应用。

## 一、引言

穆斯堡尔 $\gamma$ 射线的极化效应是基于 $\gamma$ 射线和物质相互作用的实验和理论基础逐步被人们所认识的。早在十九世纪,法拉第等人就以极大的热情来致力于光与电磁场的相互作用的实验工作,相继发现了法拉第效应、电光效应和光的塞曼效应。二十世纪初,人们把这一思想应用到 $\gamma$ 射线上去,但是在穆斯堡尔效应发现之前,做类似的实验是十分困难的。主要是能量分辨不开,极化信息只能从间接的方法得到。1959年,穆斯堡尔效应发现后不久,Argonne小组首先观察到 $^{57}\text{Fe}$ 核在金属铁箔中的穆斯堡尔极化实验谱<sup>[1]</sup>。以后,H.Frauenfelder和U.Gonser等人在理论和实验上做了大量的工作<sup>[2,3]</sup>,又证实了穆斯堡尔法拉第效应、二向色性的存在。利用这些方法可以分解复杂的谱,确定材料的磁结构和某些超精细量。最近有些学者还研究了穆斯堡尔 $\gamma$ 射线的干涉和衍射现象,建立了穆斯堡尔 $\gamma$ 射线的光学理论<sup>[4]</sup>。可以预料,随着这个领域的深入发展,它将为人们在物质结构方面获取更多的信息,开辟新的境地。

## 二、理论

$\gamma$ 射线的极化是指光子的自旋角动量在空间有一定的取向,在发射和吸收过程中,

它除了能量要发生变化外,角动量也要发生变化。因此在穆斯堡尔极化实验中,不仅要考虑能量,也要考虑角动量的匹配。在理论上要去描述源或吸收体中大量的又在时间上各不相关的单个核事件是不可能的,而只能用统计的方法去确定各种状态出现的几率。为了描述通过介质后 $\gamma$ 射线束的强度和极化的变化,引入密度矩阵是极为方便的。在形式上它可以把 $\gamma$ 射线的发射和吸收过程看作是具有各种确定极化“纯态”的叠加,而其强度即为密度矩阵之迹。

根据量子力学的结果,光子是静止质量为零的玻色子,其角动量只能取+1和-1。设入射波 $\Psi(0)$ 沿着z轴传播,如图1所示。平面波方程为

$$\left( \frac{d^2}{dz^2} + \hat{n}^2 k^2 \right) \Psi(z) = 0 \quad (1)$$

$$\text{其解是} \quad \Psi(z) = e^{i\hat{n}kz} \Psi(0) \quad (2)$$

这里 $\hat{n}$ 为介质的折射指数,加有磁场的介质呈现为各向异性时, $\hat{n}$ 可以写成 $2 \times 2$ 矩阵,

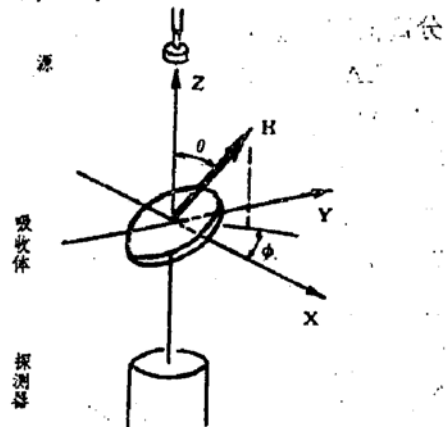


图1 观察穆斯堡尔 $\gamma$ 射线极化实验的示意图

$$\hat{n} = \begin{pmatrix} n_{++} & n_{+-} \\ n_{-+} & n_{--} \end{pmatrix}$$

也可写成一个单位矩阵与泡利矩阵的线性叠加, 即

$$\hat{n}kz = a\vec{E} + \vec{b}\vec{\sigma} \quad (3)$$

在z处的辐射强度为

$$\begin{aligned} I(z) &= \langle \Psi(z) | \Psi(z) \rangle \\ &= \langle \Psi(0) | \exp(-i\hat{n}^+kz) \exp(i\hat{n}^-kz) | \Psi(0) \rangle \\ &= \sum_m \langle m | \exp(i\hat{n}^-kz) | \Psi(0) \rangle \langle \Psi(0) | \exp(-i\hat{n}^+kz) | m \rangle \\ &= T_r \hat{\rho}(z) \end{aligned} \quad (4)$$

这里  $\hat{\rho}(z) = |\Psi(z)\rangle\langle\Psi(z)|$  定义为密度矩阵, 显然也是一个  $2 \times 2$  矩阵, 可写成

$$\hat{\rho}(z) = \frac{1}{2} I(z) (\vec{E} + \vec{P} \cdot \vec{\sigma}) \quad (5)$$

$\vec{P}$  是 Poincare 表象的极化矢量, 三个分量  $P_x, P_y, P_z$  可分别表示极化的种类和程度, 例如  $P_z = \pm 1$  表示左旋和右旋极化;  $P_x = \pm 1$  表示沿x轴和y轴的线性极化;  $P_y = \pm 1$  表示对x轴为  $\pm 45^\circ$  的线性极化等<sup>[3]</sup>。

把(3)、(5)两式代入(4)式, 并考虑泡利矩阵的一些性质, 就可写出强度在 Poincare 表象中的具体表示:

$$\begin{aligned} I(z) &= T_r \hat{\rho}(z) \\ &= \exp[i(a-a^*)] \{ [\cos b^* \cos b + (\hat{b}^* \cdot \hat{b}) \sin b^* \sin b] - i(\hat{b}^* \cdot \vec{P}_0) \sin b^* \cos b + i(bP_0) \sin b \cos b^* + i\vec{P}_0(\hat{b}^* \times \hat{b}) \sin b^* \sin b \} \end{aligned} \quad (6)$$

射线进入介质深度为z时, 各种极化分量强度比为

$$\begin{aligned} \vec{p} \cdot I(z) &= T_r(\vec{\sigma} \cdot \hat{\rho}(z)) \\ &= \exp[i(a-a^*)] \{ [i\hat{b} \sin b \cos b^* - i\hat{b} \sin b^* \cos b - i(\hat{b}^* \times \hat{b}) \sin b^* \sin b] + \vec{P}_0 \cos b^* \cos b + (\vec{P}_0 \times \hat{b}) \sin b \cos b^* + (\vec{P}_0 \times \hat{b}^*) \sin b^* \cos b + [\hat{b} \cdot (\vec{P}_0 \cdot \hat{b}^*) + \hat{b}^* \cdot (\vec{P}_0 \cdot \hat{b}) - \vec{P}_0(\hat{b} \cdot \hat{b}^*)] \sin b^* \sin b \} \end{aligned} \quad (7)$$

其中  $b = (b_x^2 + b_y^2 + b_z^2)^{1/2}$ ,  $\hat{b} = \vec{b}/b$

(6)和(7)两式表示, 穆斯堡尔  $\gamma$  射线通过厚度为z的介质后, 它的强度和极化性质归结为  $\hat{n}$  与  $\hat{\rho}$  的计算。若实验满足相应的条件时, 诸如各种极化现象、法拉第效应和科顿-穆登 (Cotton-Mouton) 效应就可被观察到。

关于介质折射指数  $\hat{n}$  和辐射密度矩阵  $\hat{\rho}$  一般表示分别为 (详细推导可参阅有关论著<sup>[2,3]</sup>)

$$\hat{n} = \hat{E} - \frac{\sigma_0}{2k_0} \sum_j N_j f_j \sum_i \hat{\rho}_j^i \frac{\Gamma/2}{(E - E_{ij}) + i(\Gamma/2)} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_j^i &= \frac{1}{(2I_e + 1)(2I_g + 1)} \sum_{L, L'} \sum_{M, M'} \frac{a_L a_{L'}}{\sqrt{(2L+1)(2L'+1)}} \sum_{m, m'} \\ &\quad \frac{e_m^i e_{m'}^{i'}}{\gamma_m^i \gamma_{m'}^{i'}} \times c_m^{L, L'} \frac{1}{h} \frac{1}{\omega} \\ &\quad c_m^{L, L'} \frac{1}{M'} \frac{1}{M} x_L^M x_{L'}^{M'} \end{aligned} \quad (8)$$

其中  $M = \bar{m} - m$ ,  $M' = \bar{m}' - m'$ 。(9)式中的  $\hat{\rho}_j^i$  是介质核子辐射密度, j 表示核处于不同的晶位, i 为不同的跃迁。 $k_0 = E/hc$ , f 为无反冲因子。

在薄吸收体近似下, 定义有效厚度为  $\tau_j = \sigma_0 N_j f_j z$ , 这时只需考虑z的一次项, 直接代入(4)式, 即可得

$$I(z) \approx I(0) - \sum_j \tau_j \sum_i T_r \left( \hat{\rho}_j^i \cdot \hat{\rho}(0) \right) \frac{(\Gamma/2)^2}{(E - E_{ij})^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (10)$$

这里可看出 j 晶位核的第 i 跃迁线, 其吸收强度正比于  $T_r(\hat{\rho}_j^i \cdot \hat{\rho}(0))$ , 因此在薄吸收体条件下, 我们可以用  $\gamma$  射线吸收强度来确定超精细场的方向。

至今为至, 穆斯堡尔极化实验最常用的同位素是  $^{57}\text{Fe}$ 。从它的第一激发态得到的 14.4KeV  $\gamma$  射线的多极辐射主要是磁偶极辐射,  $L=1$ , 此时为奇宇称, 所以



加适当外磁场达到磁饱和，这样从源发射的六条线就被极化了，在垂直于 $\gamma$ 射线的发射方向，对源和吸收体分别加有 1 KOe 外加磁场，这时得到的谱线都是线性极化。由于共振吸收与线的极化方向有关，当放射源的磁场 $\vec{H}_s$ 平行或反平行于吸收体的磁场 $\vec{H}_A$ 时，得九条谱线（图 3 (a)）；当 $\vec{H}_s$ 垂直于 $\vec{H}_A$ 时，得六条谱线（图 3 (b)）。从图中还可看到 (a)与(b) 的谱是互补的，在没有多普勒运动即( $v = 0$  处)，改变 $\vec{H}_s$ 与 $\vec{H}_A$ 之间夹角从  $-90^\circ$ 到  $+90^\circ$  时，计数率有正弦形式的变化叫做Malus曲线。这样的装置也就成为穆斯堡尔偏振仪。

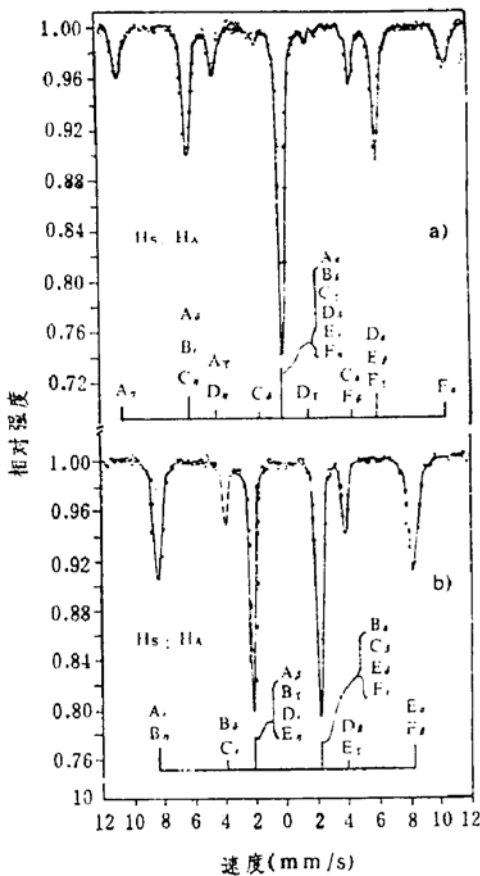


图3 (a)、(b) 源都为 $^{57}\text{Co}(\alpha\text{-Fe})$ ，吸收体都为 $\alpha\text{-Fe}$ 时，在室温条件下得到的谱。每个图下面的竖线表示预计的谱线位置和相对强度。<sup>[3]</sup>

具有四极分裂的单晶 $^{57}\text{Co}$ 源也可产生极化 $\gamma$ 射线，但它必须满足以下条件：

- 1, 单晶各个方向都可切片，
- 2, 注入的 $^{57}\text{Co}$ 只有一种电荷态，并且

具有轴对称性( $\eta = 0$ )，

3, 四极分裂足够大，谱线可以分开。这样的条件一般很难满足，现有的报导，Be单晶<sup>[6]</sup>和 $\text{LiNbO}_3$ 单晶是属于这样的材料，见图 4。若 EFG 主轴垂直于 $\gamma$ 射线方向， $\pm \frac{3}{2} \Rightarrow \pm \frac{1}{2}$  跃迁线是完全线性极化的，而 $\pm \frac{1}{2} \Rightarrow \pm \frac{1}{2}$  跃迁线是部分线性极化的<sup>[7]</sup>。

此外，还可利用 $\gamma$ 射线的二向色性，使某种极化分量被共振吸收掉，让剩下的相反极化方向的分量被透过其优点是可采用通常的单线非极化源，经滤波后得到单色的极化源，避免六线源所造成的复杂的超精细谱。这种方法可用于有大的同质异能位移的单线源（例如 $\text{CoO}$ <sup>[8]</sup>）与极化器配合得到；也可以用等速和等加速二个驱动器同步组合成驱动谱仪而得到<sup>[9,10]</sup>。

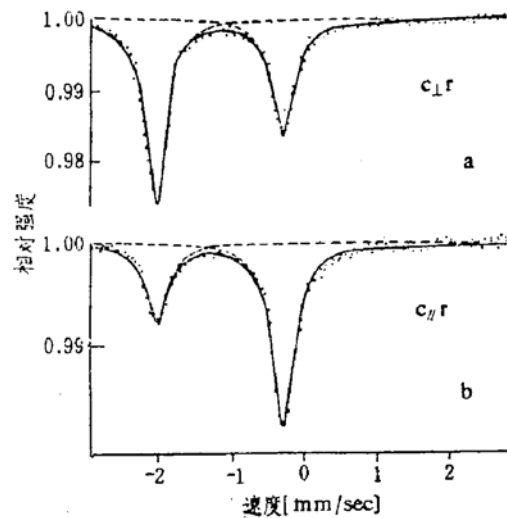


图4 源都为 $^{57}\text{Co}$  ( $\text{LiNbO}_3$ 单晶)，吸收体都为 $\text{Na}_4\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 。(a)和(b)分别表示晶体c轴相对 $\gamma$ 射线不同方向所得的谱<sup>[7]</sup>。

## 四、应用

### 1. 复杂谱的分辨

含有 $\text{Fe}^{3+}$ 顺磁铁离子的材料由于弛豫效

应的影响，常显示出一个加宽的谱线如图5a所示。许多工作表明，这种现象可以用快弛豫近似来说明，并认为谱线的加宽是由于三组不同相关弛豫时间的谱线叠加而成。为了证实这种假设，Morup利用穆斯堡尔线性极化方法<sup>[11]</sup>，在吸收体和极化源上同时加8KOe的横向磁场(磁场方向与 $\gamma$ 射线方向垂直)，使 $\Delta m = \pm 1$ 和 $\Delta m = 0$ 的三条线清楚加以分开，如图6b所示。

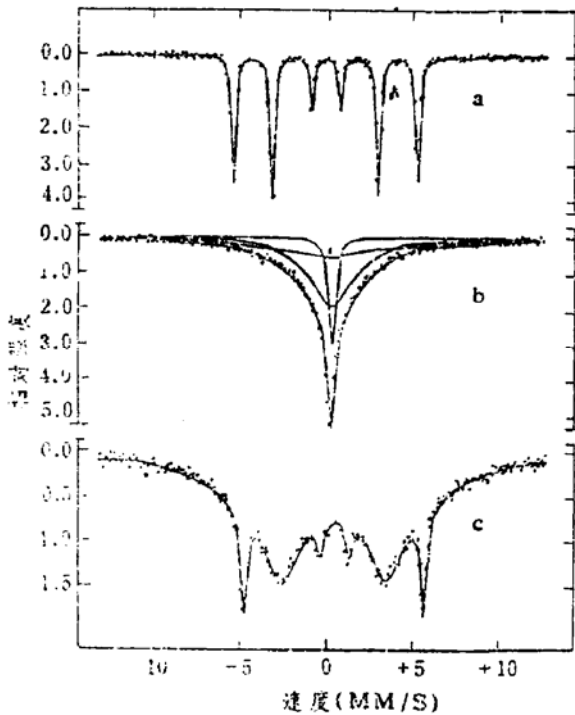


图5 (a) 吸收体为  $\text{NH}_4\text{Fe}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ，温度在113K，加8KOe外场所得的穆斯堡尔谱。  
(b) 吸收体为  $\text{NH}_4\text{Fe}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ，温度在113K，极化源为 $^{57}\text{Co}(\alpha\text{-Fe})$ 二者同时加8KOe横向磁场所得到的谱。

利用同样原理，有人把稀释在铁中的 $^{182}\text{W}$ 作为吸收体，并加有不同方向磁场分别测谱，使原来复杂的超精细谱可以分辨。

### 2. 测定内磁场的符号

核处内磁场的符号定义为与外磁场方向平行是正，反平行是负。测定符号最简单方法是对样品施加一个外磁场，观察磁超精细场增大还是减小。但这种方法有例外，如 $^{107}\text{Au}$ 核在某些材料中，当外场小于15KOe时有

一个反常现象。Blum和Grodzinz提出用加纵向场由 $\gamma$ 射线的圆极化方向来确定磁场的符号<sup>[12]</sup>。例如他们确定了Fe在Cu中的内场符号为正。

### 3. 确定电子自旋方向

在薄晶体近似下，从谱线的强度可以反映磁单晶材料中电子自旋排列的方向，从而确定磁结构。Gonser等人利用线性极化实验测定了 $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ 为共线反磁结构<sup>[13]</sup>。图6显示了六线源和 $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ 单晶吸收体计算及实验的穆斯堡尔谱。从两个谱的比较可以确定亚点阵中的 $\text{Fe}^{3+}$ 离子自旋都平行c轴，得到磁结构如图6(c)所示。这样的结果与中子衍射研究所得的一致。

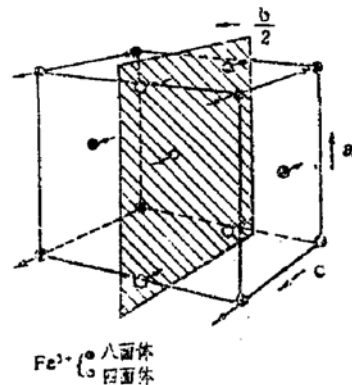
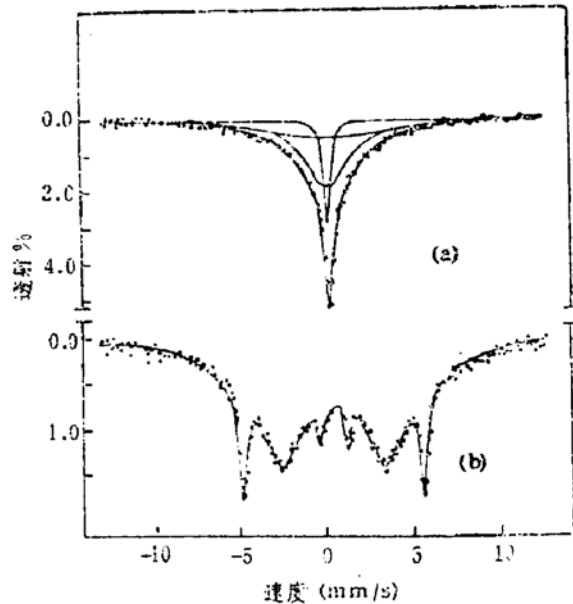


图6 (a)和(b)放射源都为 $^{57}\text{Co}(\alpha\text{-Fe})$ 并加有1KOe的横向场，(a)  $H_x$ 平行于a轴，(b)  $H_x$ 平行于c轴，(图上部竖线表示计算得到的谱线位置和相对强度)，(c)  $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ 的磁结构。

其它作者还研究了ErFeO<sub>3</sub>中自旋重取向机制<sup>[14]</sup>, FeCl<sub>2</sub>为反铁磁结构<sup>[15]</sup>等。近年来也有人用在非晶态和磁记录材料中电子自旋取向的确定<sup>[16]</sup>。

#### 4. 测定电场梯度主轴方向

四极分裂仅有  $I = \frac{3}{2}$  激发态分裂为二个

能级,  $I = \frac{1}{2}$  没有四极矩, 所以仍保持简并。

根据密度矩阵计算结果, 特别在  $\eta = 0$  时, 相应二条跃迁线的强度比为

$$R_q = \frac{I_{+3/2}}{I_{-1/2}} = \frac{1 + \cos^2\beta}{2/3 + \sin^2\beta} \quad (16)$$

这里  $\beta$  是EFG主轴与  $\gamma$  射线方向之间的夹角。对于LiNbO<sub>3</sub>晶体, ( $q < 0$ ) 从图4可看出, 当晶轴c旋转90°时, 分别得到(a)、(b)二个谱, 并且  $R_q$  恰为3:5和3:1。这就证实了LiNbO<sub>3</sub>单晶的主轴是与c轴一致, 且  $\eta = 0$ 。Harami等人也把利用密度矩阵计算结果与实验作了比较, 得到氧合肌红蛋白的EFG主轴接近于铁卟啉平面, 且  $\eta \neq 0$ <sup>[17]</sup>。

#### 5. 穆斯堡尔法拉第效应和旋光现象

$\gamma$  射线通过介质时, 除有穆斯堡尔共振吸收外, 还伴随有色散。类似光学中的磁光效应, 若有两个不同方向的圆极化  $\gamma$  射线经过加有磁场的介质后, 它们的极化方向偏转程度是不一样的。此时, 透射束的极化方向与原来会有一个转角, 这就是穆斯堡尔法拉第效应。Housley等人利用穆斯堡尔偏振仪画出了MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (浓缩<sup>57</sup>Fe 21mg/cm<sup>2</sup>) 的偏转角为19°<sup>[18]</sup>, 如图(7)所示, 还确定了铁离子在MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>中的内磁场符号以及在四面体和八面体二种晶位的配比。Barb利用双驱动偏振仪测定的YIG单晶 (59mg/cm<sup>2</sup>) 的偏转角为10.2°<sup>[19]</sup>。由于<sup>57</sup>Fe的14.4KeV极化 $\gamma$ 射线与光学中的偏振技术有许多相似效应, 而且 $\gamma$ 射线波长为0.86Å, 可以穿过非透明物质。近来也有人用此 $\gamma$ 射线对含<sup>57</sup>Fe的手型分子和不含<sup>57</sup>Fe的石英、L-D-氨基酸的旋光现象进行过研究。预期将来会有更多的实际

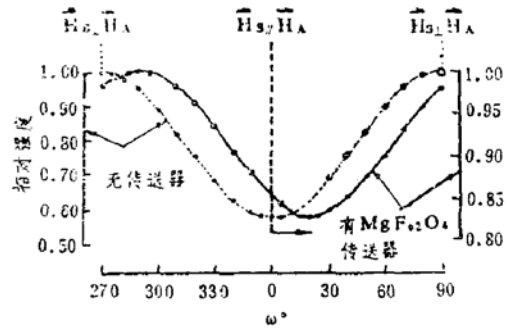


图7 用 MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 作为样品放入穆斯堡尔偏振仪中, Malus曲线移动19°

应用。

#### 参考文献

- (1) S.S.Hanna, J.Heberle, C.Littlejohn, G.J.Perlow, R.S.Preston and D.H.Vincent, Phys. Rev.Lett.4, 177 (1960)
- (2) H.Frauenfelder, D.E.Nagle, R.D.Taylor, D.R.F.Cochran, W. M.Visscher, Phys.Rev. 126, 1065 (1962)
- (3) U.Gonser and H.Fischer, Mössbauer Spectroscopy I (The Exotic Side of the Method) P99 (1981)
- (4) J.P.Hannon, N.J.Carron, C.T.Trammell, Phys. Rev. B9, 2791 and 2810 (1974)
- (5) M. Blume and O. C. Kistner, Phys. Rev. V 171, N2, 417 (1968)
- (6) R. M. Housley, Nucl. Instr. Methods. 62, 321 (1968)
- (7) W. Keune, S. K. Date, I. Dezi, U. Gonser, J. Appl. Phys, 46, 3914 (1975)
- (8) J. P. Stampfel, P. A. Flinn, Mössbauer Effect Methodology, Vol.6, ed. by I. J. Gruverman, 95 (1971)
- (9) S. Shtrikman, Solid. State. Commun. 5, 701 (1967)
- (10) 杨燮龙, 顾元吉, 赵建民, 核技术, 3, 34 (1982)
- (11) S. Morup, J. Physique Collog., 35, C6-683 (1974)
- (12) N. Blum, L. Grodzins, Phys. Rev. 136,

(下转33页)

(上接27页)

A133 (1964)

- (13) U. Gonser, R.W. Grant, H. Wiedersich, S. Geller, *Appl. Phys. Letters*, 9, 13 (1966)
- (14) R.W. Grant, S. Geller, *Solid. State. Commum.* 7, 1291 (1969)
- (15) R.W. Grant, *Phys. Rev.* 42, 1619 (1971)
- (16) U. Gonser, M. Chafari, H. G. Wag-

ner and H. Fischer, *J. de. Physique*, C2-127 (1979)

- (17) T. Harami, Y. Maeda, Y. Morita and U. Gonser, *J. de Physique*, C2-500 (1979)
- (18) P. M. Housley, U. Gonser, *Phys. Rev.* 171, 480 (1963)
- (19) D. Barb, M. Rogalski and T. Bibicu, *Nucl. Instr. Methods*, 188, 489 (1981)