

穆斯堡尔谱学实验技术和方法进展

李 士

(中国科学院高能物理研究所)

本文讨论了穆斯堡尔谱学实验技术和方法的进展。首先介绍了穆斯堡尔谱学中使用的新的技术,如同步辐射、离子注入、超低温技术、极化、射频激发和穆斯堡尔双共振等,然后介绍了它们在研究工作中的应用,并展望了发展方向。

一、前 言

穆斯堡尔效应自1958年发现以来,已经历近三十年的历史。这种无反冲核的 γ 射线的共振吸收现象,自发现以来在物理学、化学、矿物地质学、生物学、医学、冶金学、材料科学、环境科学和考古学等方面得到广泛的应用。至今,这种应用研究一直在不断的发展和拓宽,每年发表的有关穆斯堡尔谱学方面的研究论文数目持续增长。对于穆斯堡尔谱学在各个领域中的应用进展,已有许多报告介绍。本文主要从方法学的角度介绍近年来穆斯堡尔谱学新的实验方法和技术。由于这些新技术和新方法的使用,使得穆斯堡尔谱学的应用范围更加扩大,并且将可能产生目前难以预料的重大进展。

二、研究进展

1. 超低温技术

近年来随着穆斯堡尔谱学研究工作的深入发展,对于高温、低温和超低温恒温装置日渐需要。例如对于相应高能量的穆斯堡尔同位素,其穆斯堡尔效应只能在低温下才能观察到,同样,实验样品有时也必须在低温情况下才能得到有价值的信息。对于所有穆

斯堡尔同位素来说,温度效应对穆斯堡尔参数的影响很大。对于一般的低温实验,在技术上实现并不困难。如使用干冰—丙酮可达 195°K ,使用液氮可达 77°K ,使用液氢可达 20.4°K ,使用液氦可达 4.2°K 。但是如使温度低于 4.2°K ,在技术上实现要复杂得多。一般来说,对于低于 1°K 的温度,称之为超低温。

我们知道,当原子核处存在超精细场时,核能级可分裂成一系列亚能级。在超低温情况下,即当吸收体样品温度降到原子核热能与超精细分裂能级间距相同时,各个亚能级的分居不再相等,超精细谱的分量强度按玻尔兹曼分布。通过各分量强度的测量可以直接给出核取向程度。对于绝大多数穆斯堡尔同位素,定向核测量的温度范围是 $0.5^{\circ}\text{—}0.005^{\circ}\text{K}$ 。对于这样低的超低温穆斯堡尔谱学实验,可采用 $^3\text{He—}^4\text{He}$ 稀释致冷或用绝热去磁等技术来实现。

$^3\text{He—}^4\text{He}$ 稀释致冷机的原理比较简单。从 $^3\text{He—}^4\text{He}$ 溶液相图中可以看到,当温度在 0°K 时,大约有 6.4% ^3He 溶解在 ^4He 中;当温度高于 0°K 低于 0.87°K 时发生相分离。因此在 $^3\text{He—}^4\text{He}$ 混合液中, ^3He 由于较轻会浮在上部,而 $^3\text{He—}^4\text{He}$ 溶液会沉在下部。如果将下部 $^3\text{He—}^4\text{He}$ 溶液中的 ^3He 抽走,为了维持热平衡,上部的 ^3He 会不断的补充,从而吸收热量降低了整个体系的温度。绝热去磁致冷技术是利用顺磁盐,在外加磁场的情况下使顺磁盐磁化,减少了盐离子取向排列紊乱,而使磁化熵减小,使其绝热。然后去掉外加磁场,此时顺磁盐会沿着其温-熵曲线降温。通过这个绝热去磁过程而使温度降

低, 这就是绝热去磁致冷机的工作原理。Cohen等人^[3]已详细介绍了用于穆斯堡尔谱学实验的超低温实验装置。

由于温度是穆斯堡尔实验中的一个重要参数, 因为无反冲分数取决于点阵振动的激活状态。故利用超低温技术可以研究铁磁和反铁磁性材料超低温下的物性, 二次多普勒效应, 测量母核的超精细相互作用, 研究弛豫时间和晶体场效应。此外穆斯堡尔效应温度计也是一个非常有意义的研究方向^[4]。

2. 同步辐射

同步辐射是高能电子在高能同步加速器或储存环内作圆周运动时产生的电磁辐射。这种同步辐射具有许多优点, 如具有高辐射强度、高稳定性和高准直性等特点。故在六十年代末七十年代初就提出了利用同步辐射光源作为穆斯堡尔源进行穆斯堡尔实验的建议, 但是利用同步辐射进行穆斯堡尔效应实验具有一定的困难。即穆斯堡尔效应实验所需共振能量范围约为 10^{-8} eV(穆斯堡尔谱线线宽约 10^{-8} eV)强度只有10光子/秒, 而同步辐射的光强度虽然很强(约为 10^{14} 光子/秒), 经过单色器后能量约为1eV, 光强度约为 10^{10} 光子/秒, 与穆斯堡尔效应所需能量范围相差很远。此外, 这些对共振吸收无用的光子, 却会产生极强的散射本底, 这在穆斯堡尔效应实验中是不需要的。为了解决以上的问题, 各国穆斯堡尔谱学和同步辐射科学工作者进行了多种方法的实验。在这方面西德汉堡大学和美国斯坦福同步辐射实验室的研究工作取得了很大的进展^[5,6]。他们制造多个“单色器”串联使用, 经双重布喇格衍射初步能滤出十分窄的可用于穆斯堡尔共振实验的单色同步辐射光, 同时利用同步辐射光的时间结构好的特性和时间选择探测器来区分电子散射本底和原子核的共振散射。虽然离实际使用还有一些技术问题需要解决, 但为期已经不远了。可以预见, 如果能从同步辐射光中获得和穆斯堡尔线宽接近的、足够强的、极化的、准直性好的辐射光

作为穆斯堡尔源, 那么会提供许多新的实验, 必然能加速穆斯堡尔谱学的发展。

3. 双共振和射频技术^[7,8]

从穆斯堡尔效应基础理论中可知, 所谓无反冲共振吸收过程中的“无反冲”并不是绝对的。因为晶体的晶格处于不断地振动当中, 晶格振动也是量子化的, 这种振动能量用声子表述, 其振动能级间隔为 $\pm h\omega$ 。所以, 当样品施加较强的可变磁场时, 将感生内磁场的变化。通常外场是射频场, 频率为 ω , 而这种效应与直接或间接吸收和产生声子 $h\omega$ 相联系的, 因而是一种穆斯堡尔—声子双共振。所以在此类实验中, 除了 γ 射线是量子态外, 还有一个晶格振动 $h\omega$ 量子态, 即这种双量子过程显示了与 $h\omega$ 有关的共振, 故称之为双共振。除了穆斯堡尔—声子双共振之外, 还可以与电子, 电四极共振和核磁共振双共振等。

利用双共振技术可以精确测定超声频率, 测量超声引起的晶格原子振动情况, 研究电子弛豫过程等等。

穆斯堡尔双共振的实验装置比较简单, 即在穆斯堡尔实验装置上加一射频场, 用螺线圈加高功率射频发生器产生一个线偏振射频场加在吸收体样品上。改变射频场到一定的程度, 谱线会出现伴线。如果射频场强越来越大, 除了产生伴线效应之外, 还会发生另一种新现象—射频崩溃效应。这是因为在一些材料中(如坡莫合金), 施加几十Oe的射频场就会饱和。当施加较强的射频场时, 超精细场也发生交替。当频率高于原子核拉摩进动频率时会造成超精细分裂的崩溃^[9]。

4. 短寿命放射性核素穆斯堡尔谱学技术

我们知道一般情况下穆斯堡尔谱学研究所用的吸收体都是稳定的和接近稳定的穆斯堡尔共振核。这是因为: 第一透射几何条件下吸收体需要较大数量的样品(毫克到克量级); 第二为了使 γ 射线共振辐射不被吸收体的辐射吸收。如果使用短寿命的放射性核素作为吸收体, 这就是短寿命放射性核素穆斯堡尔谱学技术。测量时需要满足以下条件,

首先由于短寿命放射性同位素生产困难,所以要求吸收体样品只能取毫克量级,故吸收体面积要小,以保证单位面积上有足够多的吸收核;其次,要求使用的放射源的放射性比度要高,即要求放射源的寿命要小于吸收体的寿命。利用短寿命放射性核素技术可以研究短寿命放射性同位素,以及贵金属或者难得的稳定的同位素。

5. 离子注入穆斯堡尔谱学技术

用一般的化学和冶金方法不能将穆斯堡尔同位素引进到材料中去。1965年Ruby等人首先使用离子注入技术。最近十年来发展起来的离子注入穆斯堡尔谱学技术是利用同位素分离器,库仑激发和核反应等方法将放射性或稳定同位素注入到材料中去,然后利用穆斯堡尔谱学方法测量离子注入造成的辐射损伤、温度变化对超精细相互作用参数的影响等。早期的工作是在线的加速粒子核反应,多用重离子束流(^4He , ^{16}O)引起库仑激发产生核反冲将穆斯堡尔核注入到某些材料中去。而现在广泛使用的是同位素分离器注入法。其基本过程是先确定适合的核反应,然后用反应堆或加速器生产所需的同位素,用化学方法将不同的原子序数反应产物分开,最后用同位素分离器将剩下的具有不同质量的同位素分离。因为离子在分离前后得到加速,最终可将离子注入到一定的深度的衬底中。当然衬底材料可以选用金属材料或半导体等材料。注入深度可以通过调节加速器电压来实现。

利用离子注入穆斯堡尔谱学技术对研究辐射损伤、金属材料中的缺陷和空穴的移动、磁超精细场、半导体材料注入后的微观结构损伤和恢复等都有一定的意义。

6. 极化穆斯堡尔谱技术

在穆斯堡尔效应发现之前,核的塞曼效应的分量是分不开的,因此关于各分量的极化实验是很困难的。现在利用穆斯堡尔效应方法观察核的塞曼效应很容易。例如, ^{67}Zn 源的93KeV γ 射线在磁场H约为100Oe时,塞

曼各分量的间距会超过自然宽度。六十年代Hanna等人就开始了 ^{67}Fe 极化实验,不过当时这个方法还没有大规模地应用,仅限于 ^{67}Fe ,而且至今仍主要限于 ^{67}Fe 共振。对于 ^{67}Fe 核来说,如果 ^{67}Fe 核处于铁磁体内,那么它的超精细谱就会有6个分量,在铁磁体内磁畴取向是无规分布时,六条谱线的强度比为3:2:1:1:2:3;如果外加磁场足够大,使磁畴极化,六条谱线的强度将改变;当磁场方向与 γ 射线方向平行时,六线强度比为3:0:1:1:0:3;当磁场方向与 γ 辐射方向垂直时,六线强度比为3:4:1:1:4:3。很显然施加平行外磁场可以使谱线简化。例如对于 $\Delta m = +1$ 的第三条谱线,当观察方向与磁场方向平行(沿Z轴, $\theta = 0^\circ$)是圆极化的,与磁场方向垂直($\theta = 90^\circ$)是线极化的,而在居中($\theta = 45^\circ$)是椭圆极化的。但是我们知道 ^{67}Fe 不仅有 $\Delta m = +1$ 的第3条谱线,还有其它5条线,简单的引入外磁场,不能得到单线极化源,可以采用一个未极化的单线源和一个处在外磁场里的吸收体作为极化过滤器,利用 $^{67}\text{Co}(\text{Cu})$ 或 $^{67}\text{Co}(\text{Rh})$ 等未极化的单线源,使过滤器做常速度运动,产生了多普勒能量位移补偿Cu中 ^{67}Co 和Fe金属之间的化学移位。这些未被极化 γ 源有左旋和右旋各占50%,所有左旋的 γ 射线全部被过滤器吸收,这样便得到了单色右旋极化穆斯堡尔源。还有一个更好的方法,利用FeRhNi铁磁性材料为过滤器,其中一个谱线恰与CoO中 ^{67}Co 源的辐射线重合,因此无需使过滤器做常速度运动来补偿源和过滤器之间的移位,只要用极化过滤器将源盖上,一同放在磁场中,即可得到一个单线极化源。

利用极化实验Hanna等人^[11]首先测定了金属铁的内磁场强度为330KOe。穆斯堡尔极化实验对磁学研究作出了有益的贡献。此外利用极化实验还可以测定铁磁体、反铁磁体内磁场的方向,解释难以分开的谱线,研究电场梯度张量的取向,均方位移,磁结构,自旋结构,外场中电四极相互作用等都有一

定的意义。

三、结 语

综上所述,随着穆斯堡尔谱学研究工作的深入,穆斯堡尔实验技术和方法学也在不断地发展。除了以上介绍的几种新方法之外,还有高压穆斯堡尔谱学技术,高速和低速穆斯堡尔谱学技术, γ 激光和特殊应用等方面,这些实验技术和方法都扩大了穆斯堡尔谱学的应用范围。可以预计,随着新的实验技术的发现,穆斯堡尔谱学与这些新技术的配合使用,一定会推动穆斯堡尔谱学的发展。

参 考 文 献

- [1] 夏元复,核物理动态, 3(1986),21
- [2] 李士等,原子能科学技术, 21(1987),
380
- [3] R. L. Cohen, et al., Methods Exp.

Phys., 11(1974), 307

- [4] B. B. Triplett, et al., AIP Conf. Proc., 38(1977), 11
- [5] E. Gerda, Intern. Conf. on the Appl. of the M. E. Melbourne Australia, 17—21 August, 1987, P. *I.04
- [6] S. L. Ruby, 同[5], P. *I.05
- [7] W. Meisel, Modern Phys. in Chemistry, 1976
- [8] M. Kopcewicz, Intern. Conf. on the Appl. of the M. E. Melbourne, Australia, 17—21 August 1987, P. *I.08
- [9] L. Pteifter, J. Appl. phys., 42 (1971), 1725
- [10] S. L. Ruby et al., Phys. Rev. Lett., 14(1965), 591
- [11] S. S. Hanna, et al., Phys. Rev. Lett., 4(1960), 177