

С 3426

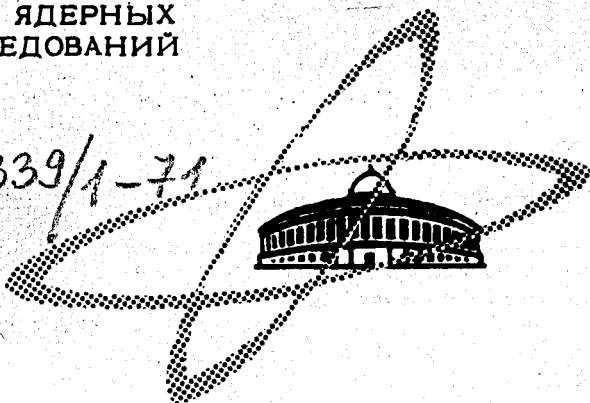
Б-532

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна.

P 14 - 5958

3339/1-71



А.И. Бескровный, Н.А. Лебедев, Ю.М. Останевич

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

РАЗВИТИЕ
МЕССБАУЭРОВСКОЙ СПЕКТРОСКОПИИ
ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ^{67}Zn

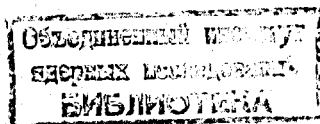
1971

P 14 - 5958

А.И. Бескровный, Н.А. Лебедев, Ю.М. Останевич

РАЗВИТИЕ
МЕССБАУЭРОВСКОЙ СПЕКТРОСКОПИИ
ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ^{67}Zn

Доклад на Международной конференции
по мессбауэровской спектроскопии,
Дрезден (ГДР), 20-25 сентября 1971 г.



Ядро ^{67}Zn — один из весьма привлекательных мессбауэровских излучателей. Его основные характеристики, $E_\gamma = 92,7$ кэв, $T_{1/2} = 10^{-5}$ сек, $\Gamma/E = 5,25 \cdot 10^{-16}$, позволяют улучшить абсолютное энергетическое разрешение в 100, а относительное — в 700 раз по сравнению с разрешением, достигаемым с помощью ^{57}Fe . Тем самым точность целого ряда фундаментальных исследований, до сих пор выполнявшихся с помощью ^{57}Fe , может быть повышена на 3 порядка.

Однако исследования с ^{67}Zn сопряжены со значительными экспериментальными трудностями, чем и объясняется малое число работ в этой области, выполненных до сих пор. Достаточно сказать, что энергетический спектр резонансного поглощения пока получен только двумя экспериментальными группами ^{/1,2/} и только для ZnO .

Природа этих трудностей достаточно прозрачна. Большой энергии перехода соответствует и большая энергия отдачи на свободном ядре

$$E_R = \frac{E_0^2}{2Mc^2} = 70 \text{ мэв,}$$
 что не позволяет хорошо выполнить основное условие наблюдения резонансного поглощения без отдачи $E_R/k\theta \ll 1$. Поэтому наблюдаемый резонансный эффект оказывается весьма малым ($\approx 2 \cdot 10^{-3}$ в ZnO). Продолжительность измерений ограничена периодом полураспада материнского ядра ^{67}Ga ($T_{1/2} = 78$ часов). И, наконец, крайне узкая γ -линия ($\Gamma = 5 \cdot 10^{-11}$ эв) требует уделять большое внимание различным факторам (примеси, вибрации, температурная обработка исследуемых веществ и т.д.), приводящим к уширению линии.

Для преодоления этих трудностей нам пришлось пойти по пути применения весьма сильных излучателей (> 100 милликюри) в обычной геометрии пропускания. Скорость регистрации в детекторе при этом достигает 10^7 и более гамма-квантов/сек.

Регистрирующая аппаратура^{/3/} в этом случае отличается от общепринятой тем, что вместо подсчета числа попаданий фотонов в детектор производится интегрирование тока детектора за короткое время (16 мксек). (рис. 1). При наличии достаточно сильных источников этот метод позволяет существенно сократить продолжительность измерений.

Сильные источники ^{67}Ga нами изготавливались следующим образом^{/4/}. Мишень из чистой меди облучалась 6-8 часов α -частицами с энергией 32 Мэв при среднем токе 150 мка. Образующийся в реакции $^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$ галлий извлекался из меди радиохимическими методами и в весьма чистом виде (примесей $< 10^{-6}$ г) вносился в требуемую матрицу высокотемпературным отжигом.

Для измерения энергетического спектра использовался многоэлементный кварцевый вибратор, состоявший из 14 пластинок пьезокварца (рис. 2), ориентированных так, чтобы амплитуды колебаний всех пластинок складывались. В отличие от работы^{/2/} нами было найдено, что движение такой системы при рабочей частоте 122 гц и синусоидальном возбуждающем напряжении не следует за формой возбуждающего напряжения на половине периода, соответствующей удлинению вибратора. Этот эффект проявлялся в виде асимметрии двух частей скоростного спектра, которые должны быть зеркально симметричными. По-видимому, асимметрия была связана с недостаточной жесткостью стопки пластин. Асимметрию удалось устранить выбором достаточно жесткой пружины (13 на рис. 2) из бериллиевой бронзы ($k \approx 100$ кг/см), которая обеспечивает предварительное сжатие стопки усилием ≈ 10 кг.

Измерения резонансного поглощения выполнялись в металлическом гелиевом криостате^{/5/} с бериллиевыми окнами для выхода γ -излучения. Криостат устанавливался на звукоизолирующем основании, состоящем из толстой металлической плиты на поролоновой подушке. Было найдено, что эффект становится ненаблюдаемым, если не прибегать к подвеске системы поглотитель-источник-вибратор на нитях. Даже при подвеске на нитях кипение жидкого азота в криостате уменьшает резонансный эффект на 30%. Поэтому измерения производились при непрерывной откачке азотного бака, что позволяло поддерживать азот твердым. Откачка гелиевого объема ниже λ -точки гелия не приводила к возрастанию эффекта.

Основная часть измерений нами выполнена с источником и поглотителем в виде окиси цинка (поглотитель ZnO , 33% ^{67}Zn ; источник - естественная окись цинка марки "особой чистоты"). Исследования влияния условий отжига источника на величину наблюдаемого эффекта показали (рис. 3), что оптимальная процедура состоит из отжига таблетки $ZnO(Ga)$ в воздухе в течение 12-16 часов при $1100+1200^{\circ}C$ с последующей закалкой таблетки в воде. При более высоких температурах начинается заметная возгонка ZnO .

Закалка источника в воде увеличивает наблюдаемый эффект на 30% по сравнению с эффектом от источника, подвергнутого медленному охлаждению. По-видимому, часть атомов галлия при медленном охлаждении образует состояния, не участвующие в эмиссии наблюдаемой мессбауэровской линии.

Кварцевый вибратор, используемый нами для создания энергетической развертки, нуждается в абсолютной калибровке. Поскольку непосредственное измерение амплитуды колебаний в нашем случае сильно затруднено, мы прибегли к хорошо известному методу частотной модуляции γ -излучения^{/6/}. Для осуществления этого опыта на основной вибратор крепилась вспомогательная кварцевая пластинка (12, рис. 2), на которую подавалось модулирующее напряжение с частотой $f = 166,66$ кГц. К этой же пластинке крепился источник.

Результаты измерений показаны на рис. 4. Боковые компоненты на рис. 4в обусловлены квадрупольным расщеплением уровня 92,7 кэв. Полный спектр в нашем случае должен состоять из 7 линий (рис. 5), соответствующих квадрупольному расщеплению уровня 5/2 в источнике и поглотителе. Параметры расщепления $|e^2 q Q| = 2,32 \pm 0,11$ Мгц и $\eta = 0,19 \pm 0,04$ хорошо согласуются с результатами де-Ваарда^{/2/} (2,47 \pm 0,03 Мгц и 0,23 \pm 0,06). Значение пьезомодуля кварца, определенное нами из опыта с частотной модуляцией, $d_{11} = (2,2 \pm 0,12) \cdot 10^{-10}$ см/вольт, находится в разумном согласии с обычно используемым значением $d_{11} = 2,02 \cdot 10^{-10}$ см/вольт^{/7/}.

Ширина линии в наших опытах обычно составляла 0,8 \pm 1,0 мкм/сек и 0,6 \pm 0,8 мкм/сек для центрального и боковых пиков соответственно, что в 2 \pm 3 раза превышает нижний предел $2\Gamma_0 = 0,3$ мкм/сек.

Серия опытов была посвящена исследованию влияния температуры на характеристики скоростных спектров. В этих опытах источник поддерживался при гелиевой температуре, поглотитель нагревался до 50⁰К. Температура поглотителя контролировалась с помощью термпар медь-константан и с помощью германиевого термометра сопротивления^{/8/}.

Результаты измерений показаны на рис. 6 и рис. 7. Как видно из этих рисунков, в случае ⁶⁷Zn температурное красное смещение становится наблюдаемым эффектом, начиная примерно с 20⁰К. Величина температурного сдвига в этом интервале температур растет, как T^4 .

Исчерпывающая теория этого явления для кристаллов с несколькими атомами в элементарной ячейке дана Ю. Каганом^{/9/}. К сожалению, для ZnO неизвестны основные характеристики, требуемые для прямого сравнения опыта с точной теорией^{/9/}. Другая возможность заключается в сопоставлении наших результатов с данными по теплоемкости окиси цинка. Хорошо известно соотношение

$$\frac{\nu(T_2) - \nu(T_1)}{\nu_0} = \frac{E(T_2) - E(T_1)}{2Mc^2}, \quad (1)$$

связывающее температурный сдвиг резонансной линии с полной энергией и массой излучающего атома в кристалле с одним атомом в элементарной ячейке^{/10/}. В пределе низких температур, когда возбуждены только акустические колебания, можно считать, что каждая элементарная ячейка многоатомного кристалла колеблется, как целое. В этом приближении выражение (1) остается справедливым, если под E и M подразумевать энергию и массу всей элементарной ячейки. Сопоставление наших результатов с имеющимися данными по теплоемкости ZnO ^{/11/} показывает (рис. 7), что такой низкотемпературный предел довольно хорошо согласуется с экспериментом. Выражение (1) в этом пределе принимает вид

$$\frac{\nu(T_S) - \nu(T_A)}{\nu_0} = \alpha (T_A^4 - T_S^4)'; \quad (2)$$

где индексы S и A относятся к источнику и поглотителю. Коэффициент α из мессбауэровских опытов имеет значение $\alpha_M = (0,141 \pm 0,012) \cdot 10^{-20} (\text{°K})^{-4}$, тот же коэффициент, найденный из определений теплоемкости^{/11/}, имеет значение $\alpha_T = (0,167 \pm 0,002) \cdot 10^{-20} (\text{°K})^{-4}$.

Следующий тип экспериментов, к которым мы приступили, — это поиск резонанса с источником и поглотителем в разных матрицах. Малость резонансного эффекта и ширины линии накладывают очень жесткие ограничения на круг исследуемых веществ. Пока нам удалось наблюдать резонанс с источником $MgO(^{67}Ga)$ и поглотителем ZnO (рис. 8). Излучатель $MgO(^{67}Ga)$ имеет одиночную линию испускания, поэтому скоростной спектр состоит из трех линий, соответствующих квадрупольному расщеплению основного состояния ^{67}Zn ($I = 5/2$). Этот спектр непосредственно позволяет определить знак градиента электрического поля в ZnO , который оказывается > 0 . Центр тяжести спектра сдвинут относительно нуля и находится при скорости (-21 ± 2) мкм/сек. В настоящее время неясно, какая часть этого сдвига может быть сопоставлена

с обычным изомерным сдвигом, связанным с изменением распределения плотности электронов в атоме Zn , так как по порядку величины такой же сдвиг может быть вызван различием энергии нулевых колебаний атомов Zn в решетках ZnO и MgO . (В дебаевском приближении сдвигу 15 мкм/сек соответствует $\Delta\theta = 130^\circ K$).

Согласно модельным представлениям^{/12/} существование элементарной длины ℓ должно приводить к уширению спектральных линий. Наименьшая ширина, наблюдавшаяся нами для боковых компонент спектра (рис. 5), равна $0,6 \pm 0,1$ мкм/сек. Без поправок на уширение линии за счет геометрии опыта и конечной толщины образца верхняя оценка для элементарной длины имеет значение:

$$\ell < \sqrt{\frac{\Delta\nu}{\nu}} R_{Zn} = 1.10^{-20} \text{ см.}$$

В заключение авторы благодарят персонал циклотрона У-200 за большую помощь в приготовлении источников, Ф.Л. Шапиро, Н.М. Плакиду и Л. Черя за плодотворное обсуждение результатов, а также Е.А. Пикельнер и А.И. Секирина за помощь при измерениях.

Л и т е р а т у р а

1. В.П. Алфименков, Ю.М. Останевич, Т. Русков, А.В. Стрелков, Ф.Л. Шапиро, Янь У-гуан. ЖЭТФ, 42, 1029 (1962).
2. H. de Waard and G.J. Perlow. Phys. Rev. Lett., 24, 566 (1970).
3. А.А. Жаринов, Г.П. Жуков, Ю.М. Останевич, К.Г. Родионов, Б.Н. Соловьев, В.Г. Гришин, Хоанг Зыонг Куан. Многоканальный анализатор для токовой регистрации ядерных излучений. В сб. "Международный семинар по ядерной электронике", Варна 1969, изд. ОИЯИ, 13-4720, Дубна, 1970, стр. 315-318.
4. А.И. Бескровный, Н.А. Лебедев, Ю.М. Останевич, В. Хильдебрандт. Сообщение ОИЯИ, 14-5573, Дубна, 1971.

5. В.П. Алфименков, Ю.М. Останевич, А.В. Стрелков, Е. Савицки, Л. Чер, У Бай-ши. Препринт ОИЯИ, 13-2988, Дубна, 1966.
6. T.E. Cranshaw, P. Reivari. Proc. Phys. Soc., 90, 1059 (1967).
7. Л. Бергман. Ультразвук, ИЛ, М., 1957, стр. 69.
8. А.И. Зарубин. Низкотемпературный термометр сопротивления, авторское свидетельство 247554 (1969).
9. Ю. Каган. ЖЭТФ, 47, 366 (1964).
10. B.D. Josephson. Phys. Rev. Lett., 4, 341 (1960).
11. G.H. Heiland, E. Möllwo, F. Stöckmann. В книге "Solid State Physics" ed. F. Seitz. v.8, p. 191, Acad. Press (1959); Справочник химика, ГХИ, М-Л., 1962, ч.1, стр. 742.
12. Д.А. Киржиц, В.А. Чечин. Ядерная физика, 7, 431 (1968).

Рукопись поступила в издательский отдел
26 июля 1971 года.

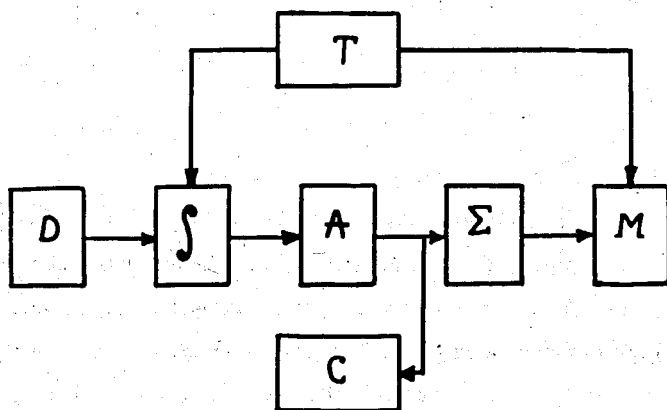


Рис. 1. Блок-схема регистрирующей аппаратуры для работы в токовом режиме. Д - детектор, S - интегратор тока, А - амплитудно-цифровой преобразователь, Σ - сумматор, М - магнитное запоминающее устройство, С - пересчётное устройство емкостью 10^{10} отсчётов, Т - синхронизирующий блок.

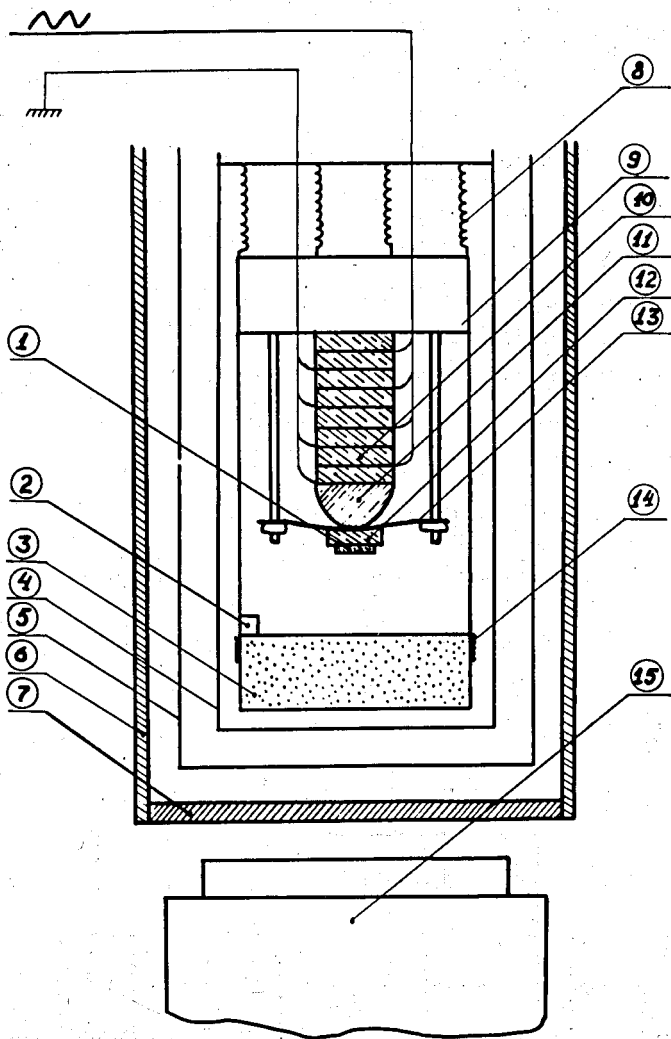


Рис. 2. Схематическое изображение установки. 1 - источник γ -излучения; 2 - низкотемпературный термометр сопротивления; 3 - поглотитель из окиси цинка; 4 - гелиевый экран; 5 - азотный экран; 6 - вакуумный кожух; 7 - бериллиевое окно; 8 - медные провода для охлаждения подвески; 9 - металлическая плита для крепления кварцев; 10 - кварцевый вибратор; 11 - изолятор; 12 - вспомогательная кварцевая пластина; 13 - пружина из бериллиевой бронзы; 14 - подогреватель; 15 - детектор γ -излучения.

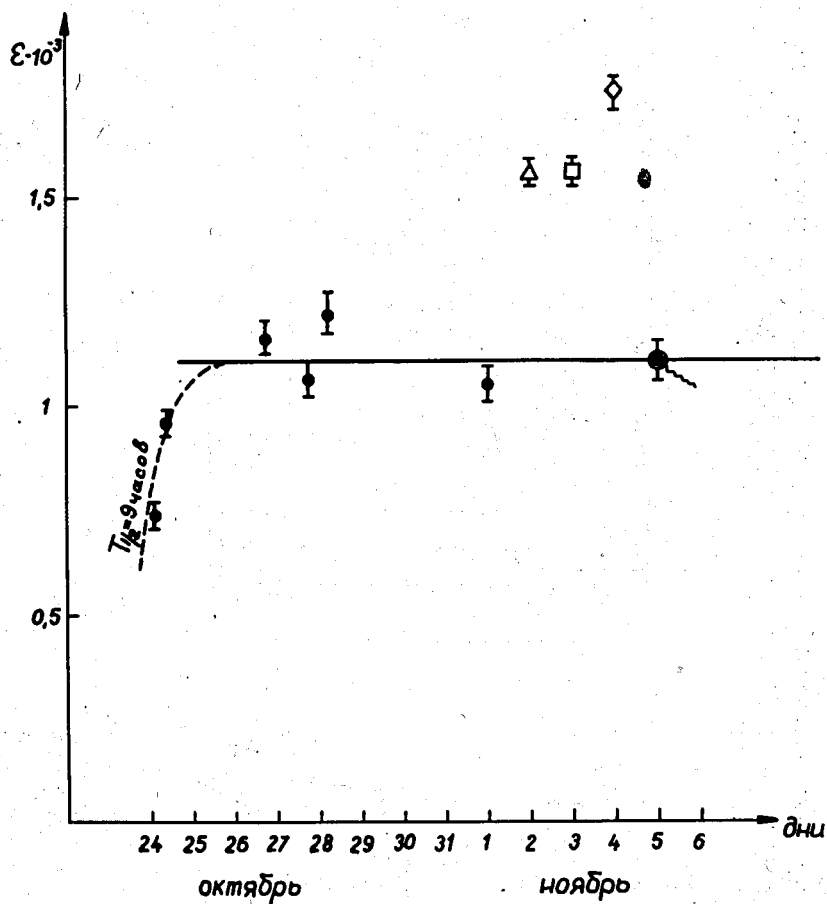


Рис. 3. Зависимость величины резонансного эффекта от времени измерений и условий заковки источника. ● - 1100°, 6 часов, охлаждение в печи; △ - повторный нагрев до 1200°, заковка в воздухе; □ - повторный нагрев до 1150°, заковка в жидком азоте; ◇ - повторный нагрев до 1160°, заковка в воде; ● - повторный нагрев до 1150°, охлаждение в печи источника, ранее подвергнувшегося заковке.

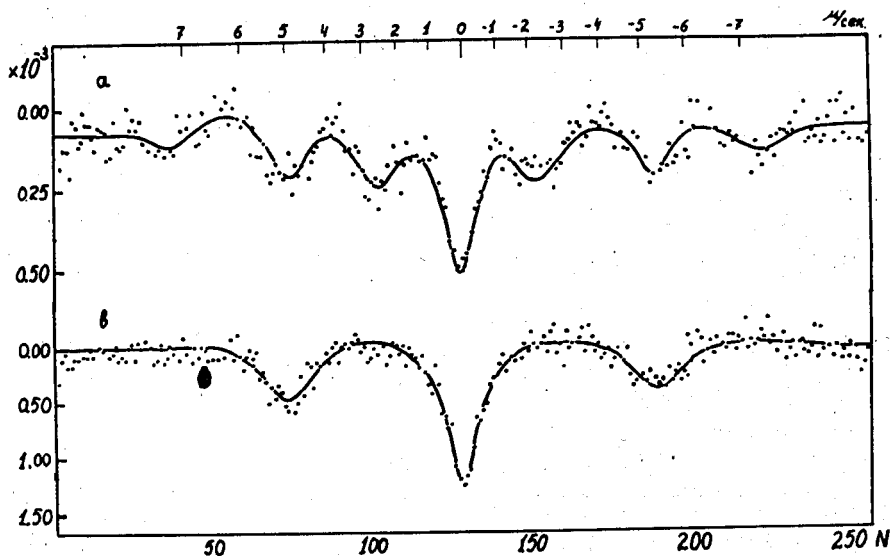


Рис. 4. Скоростной спектр в ZnO (центральная часть); *a* – с частотной модуляцией; *b* – без частотной модуляции; по ординате – поглощение в относительных единицах.

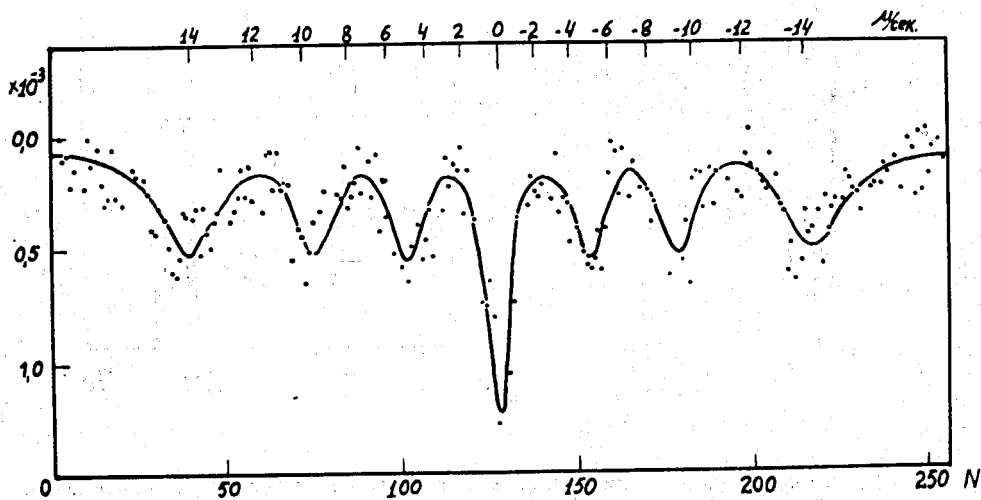


Рис. 5. Полный скоростной спектр в ZnO .

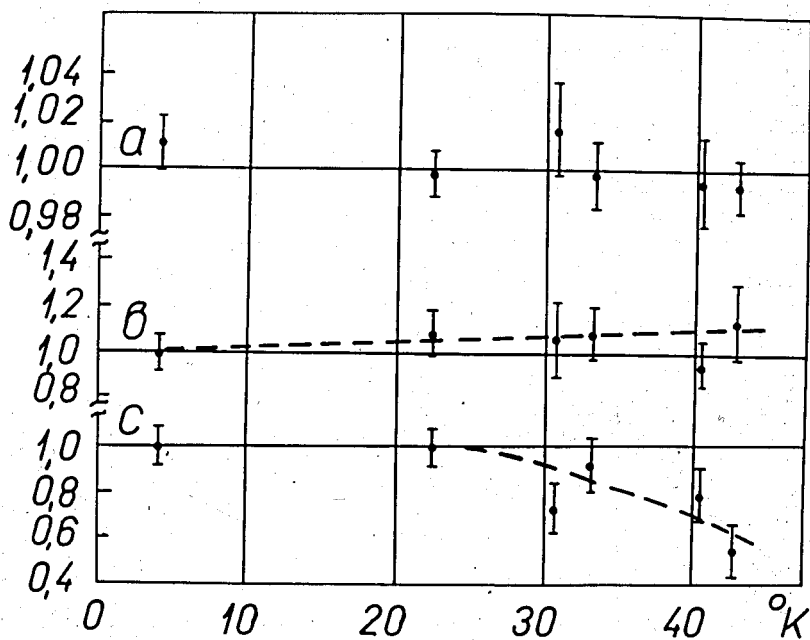


Рис. 6. Зависимость характеристик скоростных спектров в окиси цинка от температуры поглотителя (относительные единицы). а) - расстояние между первыми боковыми пиками; б) - ширина линии; в) - площадь под центральным пиком.

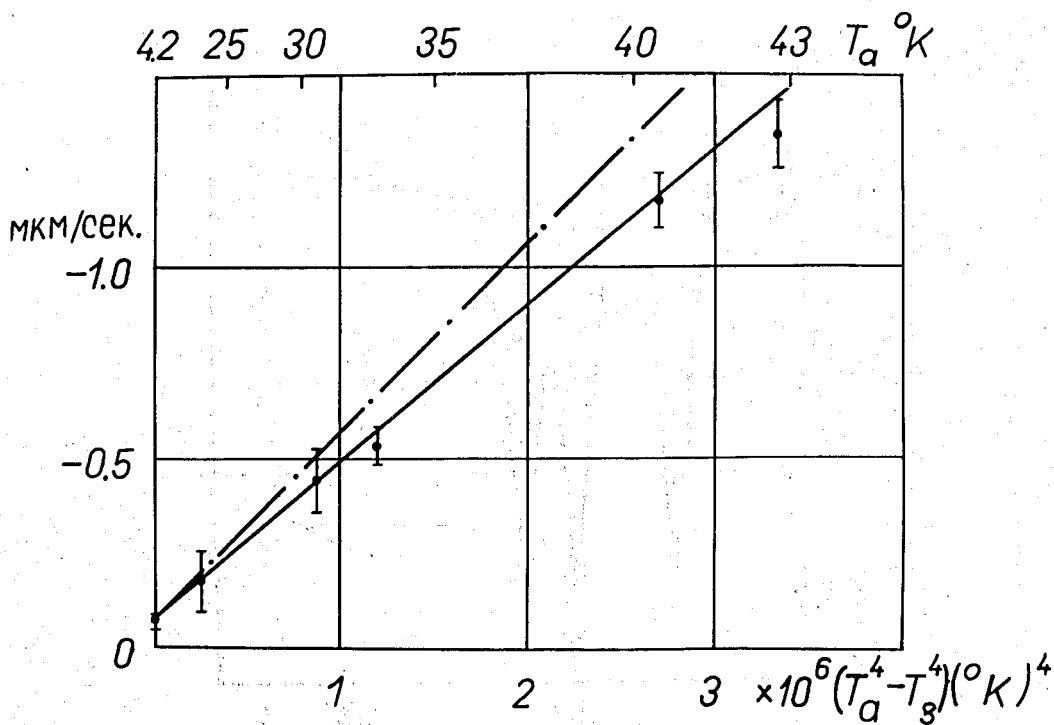


Рис. 7. Температурный сдвиг в окиси цинка. - · - ожидаемые по величине теплоемкости значения сдвига.

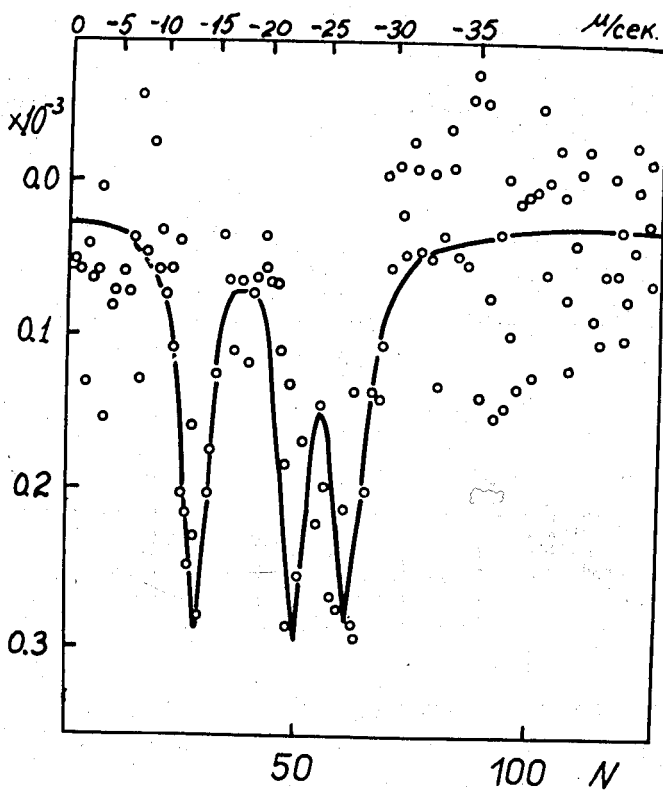


Рис. 8. Скоростной спектр. Поглотитель - ZnO , источник - MgO (^{67}Ga).