

**МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ,
МОЛОДЕЖИ И СПОРТА УКРАИНЫ
ХАРЬКОВСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
ИМЕНИ В. Н. КАРАЗИНА**

В. Г. Кириченко, О.В. Коваленко

СВЕРХТОНКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

Харьков – 2011

УДК 539.143.49:620.193

ББК 22.383

К-21

**ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ В РАДИАЦИОННОМ
МАТЕРИАЛОВЕДЕНИИ.**

Кириченко В. Г., Коваленко О.В. – Х.: Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, 2011.-146с.

В пособии изложены основы сверхтонких взаимодействий (СТВ) в твердых телах. с

© Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина, 2011

© В. Г. Кириченко kirichenko@pht.univer.kharkov.ua

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
1. СВЕРХТОНКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ	6
1.1. Сверхтонкие взаимодействия и радиационные повреждения в твердых телах	6
1.2. Сверхтонкие взаимодействия ядер с электронной подсистемой в твердых телах	8
1.3. Магнитное сверхтонкое взаимодействие	18
1.4. Динамика колебаний атомов	25
1.5. Диффузия и релаксация	30

ВВЕДЕНИЕ

Сверхтонкие взаимодействия (СТВ) – это взаимодействия ядерной подсистемы с электронной подсистемой в конденсированных средах.

Экспериментальная регистрация СТВ и изучение сверхтонких взаимодействий в твердых телах производится с помощью ядерно-физических методов. К ядерно-физическим методам относятся ядерный гамма-резонанс (ЯГР, или эффект Мессбауэра), ядерный магнитный резонанс (ЯМР), электронный парамагнитный резонанс (ЭПР), ядерный квадрупольный резонанс (ЯКР), метод возмущенных угловых корреляций (ВУК), метод электрон-позитронной аннигиляции (ЭПА), метод ориентированных ядер (ОЯ) и ряд других. Методы изучения СТВ являются достоверными источниками информации о следующих характеристиках твердых тел:

- ◆ спиновая и электронная плотности в твердых телах;
- ◆ локальное окружение ядер-зондов;
- ◆ динамика кристаллической решетки;
- ◆ структурные и фазовые превращения в конденсированных средах;
- ◆ диффузионные и миграционные процессы в условиях внешних воздействий (облучение, коррозия, давление и т. п.);
- ◆ магнитные явления в твердых телах.

Ядерно-физические методы находят широкое применение в ядерной технике и ядерной технологии в таких областях как:

- Ядерные технологии в энергетике
- Реакторное материаловедение
- Ядерная медицина и ядерная биология
- Экология ядерных технологий и ядерного топливного цикла
- Менеджмент в сфере ядерных технологий

Экспериментальные методы регистрации СТВ, в частности ядерный гамма-резонанс, широко применяются при решении многих проблем и задач физики твердого тела и физического

материаловедения, проблем физики радиационных повреждений и реакторного материаловедения.

Значительный научный и прикладной интерес вызывает изучение СТВ в конструкционных материалах ядерной энергетики в связи с проблемой повышения радиационной и коррозионной стойкости материалов, таких как сплавы циркония, ванадия, железа и никеля, аустенитные и ферритные коррозионно-стойкие стали, керамические и неорганические материалы.

Регистрация СТВ в облученных материалах за счет высокой чувствительности к локальному ближайшему окружению ядер-зондов позволяет идентифицировать дефекты и комплексы дефектов более надежно и однозначно по сравнению с другими методами, изучить радиационно-стимулированные процессы изменения структурно-фазового состояния материалов, определить термодинамические и электронные параметры радиационных дефектов и мелких комплексов.

Радиационное материаловедение развивается в пространстве высоких технологий в условиях все более возрастающих жестких требований к эксплуатационным характеристикам конструкционных и топливных материалов атомной техники с минимизацией временного промежутка между разработкой нового материала и его использованием в ядерной энергетике. Поэтому особое значение и ценность приобретают методы исследований, такие как СТВ, позволяющие выбрать наиболее перспективные направления научно-технических разработок на основе анализа экспериментальных данных о ранних стадиях образования, формирования и эволюции радиационных дефектов и комплексов дефектов.

Настоящее пособие посвящено введению в основы СТВ.

1. СВЕРХТОНКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ.

1.1. Сверхтонкие взаимодействия и радиационные повреждения в твердых телах

Рассмотрим основные проблемы исследования сверхтонких взаимодействий и радиационных повреждений в твердых телах, в частности – в металлах и сплавах, и кратко изложим основные тезисы дальнейшего рассмотрения анализа этих проблем.

Получаемая посредством СТВ информация специфична тем, что она характеризует локальные свойства твердых тел, поскольку сведения дает система ядер, взаимодействующая с окружающей их электронной плотностью в твердом теле.

СТВ можно разделить на электрическое монопольное, электрическое квадрупольное и магнитное дипольное взаимодействие.

В случае наблюдения эффекта Мессбауэра первое взаимодействие проявляется в виде изомерного сдвига мессбауэровских спектров, измеряющего зарядовую электронную плотность в области ядра $|\psi(0)|^2$.

Второе обусловлено тензором градиента электрического поля (ГЭП) в области ядра. Для расчета $|\psi(0)|^2$ и полного ГЭП в металлических кристаллах нужны детальные сведения о s, p и d – волновых функциях электронов и самосогласованный учет взаимного влияния внутриатомных и межатомных электронных взаимодействий. Решение этой чрезвычайно сложной задачи происходит путем рассмотрения наиболее простых систем, поддающихся численной оценке.

Магнитное сверхтонкое взаимодействие является суммой нескольких вкладов, определяемых взаимодействием магнитного момента ядра со спиновой электронной плотностью электронов проводимости, орбитальными моментами электронов, спиновой электронной плотностью электронов собственного ионного остова и т. д.

Динамика колебаний атомов может исследоваться методом ЯГР, во-первых, с помощью определения фактора Дебая–Валлера (ФДВ), который в гармоническом приближении теории кристаллов записывается в виде $f = \exp(-\langle x^2 \rangle / \Lambda^2)$, где $\langle x^2 \rangle$ – среднеквадратичное смещение ядра в направлении распространения регистрируемого γ – кванта за время жизни ядерного уровня τ , $\Lambda = \lambda / 2\pi$; λ – длина волны мессбауэровского излучения, и, во-вторых, доплеровского сдвига второго порядка $\delta E = - \langle v^2 \rangle / 2c$, где $\langle v^2 \rangle$ – среднеквадратичная скорость мессбауэровского атома для тех же условий, что и для $\langle x^2 \rangle$, а c – скорость света. С помощью метода ЯГР можно также изучать механизм диффузии на атомном уровне.

Действующие на ядро электромагнитные поля считаются постоянными, если их флуктуации происходят за время, большее времени жизни возбужденного уровня ядра τ . В противоположном случае среднее за время τ электромагнитное поле равно нулю. Возмущения, характеризующиеся временами порядка τ , приводят к релаксационным явлениям и соответственно характерным проявлениям в СТВ.

Релаксация вызывается диффузионными перемещениями, как самой примеси, так и соседних с ней атомов, электронными флуктуациями и электронным обменом между различными состояниями (например, короткоживущими высокозарядовыми состояниями атома после К-захвата), флуктуациями атомного спина.

В экспериментах прецессионного типа по изучению углового распределения ядерных излучений характерные времена могут быть на несколько порядков меньше величины времени жизни возбужденного уровня $\tau = 9,78 \cdot 10^{-8}$ с мессбауэровского ядра ^{57}Fe , но возможность изучения релаксационных процессов ограничивается временем быстрогодействия аппаратуры (примерно $10^{-10} \dots 10^{-11}$ с). Поэтому в настоящее время методики, исследующие СТВ, пока нельзя привлечь к изучению быстро протекающих процессов в каскаде столкновений, тепловом пике, а также процессов рождения и аннигиляции пар Френкеля при предпороговых энергиях.

СТВ в твердых телах с металлической проводимостью в основном исследовались методами гамма-спектроскопии: ядерного гамма-резонанса (ЯГР или эффекта Мессбауэра), возмущенных угловых корреляций (ВУК), ориентированных ядер (ОЯ), а также радиоспектроскопического метода ядерного магнитного резонанса (ЯМР). Чаще всего объектом таких исследований являются точечные дефекты в металлах. Такие эксперименты применительно к радиационным повреждениям условно можно разделить на три группы.

В первой группе (так называемые эксперименты “один к одному”) исследуются СТВ и динамика колебаний возмущенного ядра примесного атома с его окружением.

Ко второй группе относятся эксперименты, в которых возбужденные или стабильные ядра атомов примеси регистрируют изменения СТВ и динамики колебаний, происходящие около них при внешнем облучении.

В третьей группе исследуется влияние радиационных повреждений на электронную структуру и динамику решетки металлической матрицы.

Перейдем к подробному анализу основ применения методов СТВ.

1.2. Сверхтонкие взаимодействия ядер с электронной подсистемой в твердых телах

Сверхтонкие взаимодействия (СТВ) – это взаимодействия между ядром и окружающими атомными полями.

Энергией СТВ называется энергия взаимодействия между ядром и электрическими и магнитными полями, создаваемыми окружающими атомными и молекулярными электронами. Как указывалось выше, в твердых телах доминируют три типа СТВ:

- 1) электрическое монопольное;
- 2) электрическое квадрупольное;
- 3) магнитное дипольное.

Получаемая посредством СТВ информация специфична тем, что она характеризует локальные свойства вещества на наноуровне, поскольку сведения дает система ядер,

взаимодействующая с окружающей их электронной и спиновой плотностью.

Следуя процедуре [1] получения гамильтониана сверхтонких взаимодействий с использованием скалярного и векторного потенциала, запишем выражение для СТВ-гамильтониана в виде разложения в ряд:

$$H = H(E0) + H(M1) + H(E2) + \dots, \quad (1.1)$$

где первый член $H(E0)$ связан с электрическим монопольным, второй – $H(M1)$ – с магнитным дипольным, третий – $H(E2)$ – с электрическим квадрупольным взаимодействием. Первый и третий члены определяются полной энергией электростатического взаимодействия ядра с зарядом Ze с окружающими ядро зарядами электронов ионного остова и электронов проводимости, а также других ионов. Первый член относится к электростатическому взаимодействию сферически распределенного ядерного заряда с зарядом s -электронов, вероятность проникновения, которых в область ядра конечна (в отличие от p - и d -электронов).

Чтобы определить, каково электростатическое взаимодействие, рассмотрим классическое электромагнитное взаимодействие. Энергия (гамильтониан) свободной нерелятивистской частицы с массой m , обладающей импульсом $\vec{P}_{\text{своб}}$, вычисляется по формуле:

$$H_{\text{своб}} = \frac{\vec{P}_{\text{своб}}^2}{2m}. \quad (1.2)$$

Как изменится вид гамильтониана, если частица будет двигаться в электрическом поле \vec{E} и магнитном поле \vec{B} ?

Оказывается, эти изменения лучше всего выразить, используя скалярный A_0 и векторный \vec{A} потенциалы, вводимые следующим образом:

$$\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}, \quad (1.3)$$

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}A_0 - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} . \quad (1.4)$$

Гамильтониан точечной частицы с зарядом q , движущейся во внешнем поле, можно получить из гамильтониана свободной частицы, если воспользоваться предписанием Лармора, заключающимся в следующей замене:

$$H_{\text{своб}} \rightarrow H_{\text{своб}} - qA_0, \quad (1.5)$$

$$\vec{P}_{\text{своб}} \rightarrow \vec{P} - (q/c) \vec{A} . \quad (1.6)$$

Получающееся взаимодействие называют минимальным электромагнитным взаимодействием. Этот термин придумал Гелл–Манн, который в свое время ввел понятие и название кварков («Три кварка для короля Марка» кричали чайки в романе Дж. Джойса), чтобы подчеркнуть то обстоятельство, что только одна величина, а именно $-q$ – заряд вводится в теории электромагнетизма в качестве фундаментальной постоянной. Имеющиеся токи считают связанными с движением заряженных частиц. В частности, ток создаваемый точечной частицей со скоростью \vec{V} равен $q\vec{V}$.

Далее мы считаем, что своим существованием все мультипольные моменты (дипольный, квадрупольный) обязаны исключительно структуре частицы- ядра; в качестве фундаментальных постоянных эти моменты мы не рассматриваем. Вставив (1.6) в (1.2), получим:

$$H = H_{\text{своб}} + H_{\text{int}} + \frac{q^2 A^2}{2mc^2} , \quad (1.7)$$

$$H = \frac{1}{2m} \left(\vec{P} - \frac{q}{c} \vec{A} \right)^2 + qA_0 , \quad (1.8)$$

$$\text{где } H_{\text{int}}(\vec{x}) = -\frac{q}{mc} \vec{P}\vec{A} + qA_0. \quad (1.9)$$

Взаимодействие $H_{\text{int}}(\vec{x})$ – это энергия взаимодействия нерелятивистской точечной частицы (ядра), находящейся в точке \vec{x} , характеризуемого потенциалами A_0 и \vec{A} . Подставим $\vec{j} = \rho\vec{V}$, где \vec{j} плотность тока, ρ плотность заряда в (1.9):

$$H_{em} = \frac{q}{c} \int d^3x (c\rho A_0 - \vec{j}\vec{A}). \quad (1.10)$$

Теперь гамильтониан взаимодействия между ядром с плотностью заряда $Z\rho(\vec{x})$ и скалярным потенциалом A_0 можно записать в следующем виде:

$$H_{em} = Ze \int d^3x \rho(\vec{x}) A_0(\vec{x}), \quad (1.11)$$

где интегрирование проводится по объему ядра.

Разлагая $A_0(\vec{x}) = A_0(x_1, x_2, x_3)$ в степенной ряд возле точки, в которой находится центр заряда (ядра), с учетом условия нормировки плотности заряда $\int d^3x \rho(\vec{x}) = 1$ получим:

$$H_{em} = H_{em}^{(0)} + H_{em}^{(1)} + H_{em}^{(2)}, \quad (1.12)$$

$$H_{em}^{(0)} = ZeA_0(0), \quad (1.13)$$

$$H_{em}^{(1)} = Ze \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\partial A_0}{\partial x_i} \right)_0 \int d^3x \rho(\vec{x}) x_i, \quad (1.14)$$

$$H_{em}^{(2)} = \frac{Ze}{2} \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\partial^2 A_0}{\partial x_i^2} \right)_0 \int d^3x \rho(\vec{x}) x_i^2. \quad (1.15)$$

Координатная система выбрана таким образом, чтобы перекрестные члены вида $\left(\frac{\partial^2 A_0}{\partial x_i \partial x_j} \right) x_i x_j$ обращались в нуль.

Слагаемое $H_{em}^{(0)}$ описывает взаимодействие между точечным ядром с зарядом Ze и потенциалом A_0 . Слагаемое $H_{em}^{(1)}$ исчезает, поскольку ядра имеют вполне определенную четность. Таким образом, интерес представляет лишь третье слагаемое $H_{em}^{(2)}$.

Вторая производная $\left(\frac{\partial^2 A_0}{\partial x_i^2} \right)_0$ – это градиент электрического поля (ГЭП) вдоль оси x_i , рассматриваемый в точке, равной нулю. Если использовать принятые обозначения:

$$\left(\frac{\partial^2 A_0}{\partial x_i^2} \right)_0 \equiv V_{ii}; \quad V_{33} = V_{zz}; \quad r^2 = x_1^2 + x_2^2 + x_3^2 \quad (1.16)$$

и разбить на сумму $H_{em}^{(2)} = H_m + H_Q$, то получим:

$$H_m = \frac{Ze}{6} \sum_i V_{ii} \int d^3x \rho(\vec{x}) r^2, \quad (1.17)$$

$$H_Q = \frac{Ze}{6} \sum_i V_{ii} \int d^3x \rho(\vec{x}) (3x_i^2 - r^2). \quad (1.18)$$

Рассмотрим электрическое монопольное взаимодействие H_m . Используем уравнение Пуассона:

$$\nabla^2 V = \sum_i V_{ii} = -4\pi q \rho_e. \quad (1.19)$$

Плотность заряда $q \rho_e$ в месте нахождения ядра создается атомными и молекулярными электронами и дается формулой:

$$q \rho_e(0) = -e |\psi(0)|^2, \quad (1.20)$$

где $|\psi(0)|^2$ – плотность вероятности нахождения электрона на ядре. Интеграл в H_m – это просто квадрат среднеквадратичного радиуса ядра $\langle r^2 \rangle = \int d^3r r^2 \rho(r)$, так, что электрическое монопольное взаимодействие равно:

$$H_m = \frac{2\pi}{3} Ze^2 \langle r^2 \rangle |\psi(0)|^2, \quad (1.21)$$

Взаимодействие H_m сдвигает уровень энергии ядра, по сравнению со случаем точечного ядра, для которого $\langle r^2 \rangle = 0$. Сдвиг пропорционален среднему значению квадрата радиуса ядра и плотности вероятности нахождения электронов на ядре, т. е. электронной плотности на ядре.

Рассмотрим электрическое квадрупольное взаимодействие H_Q .

H_Q описывает взаимодействие между ГЭП и квадрупольным моментом ядра:

$$H_Q = \frac{Ze}{6} \sum_i V_{ii} \int d^3x \rho(\vec{x}) (3x_i^2 - r^2); \quad (1.22)$$

Для сферических ядер $\int d^3x \rho(\vec{x}) 3x_i^2 = \int d^3x \rho(\vec{x}) r^2$ и поэтому H_Q исчезает.

Чтобы найти H_Q для несферических ядер, рассмотрим сначала сферически симметричное распределение электронов, например s-электронов. Для таких электронов $V_{11} = V_{22} = V_{33} = V_{zz}$ и гамильтониан:

$$H_Q = \frac{Ze}{6} \sum_i V_{ii} \int d^3x \rho(\vec{x}) (3x_i^2 - r^2), \quad (1.23)$$

опять обращается в нуль, поскольку:

$$\sum_{i=1}^3 (3x_i^2 - r^2) = 0.$$

Таким образом, вклад в H_Q дают только электроны с несферическим распределением заряда. Для таких электронов $\psi(0) = 0$, и уравнение Пуассона переходит в более простое уравнение Лапласа:

$$V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} = 0. \quad (1.24)$$

Для аксиально-симметричного градиента поля, т. е. при условии $V_{xx} = V_{yy} = 0$; квадрупольное взаимодействие:

$$H_Q = \frac{1}{4} e V_{zz} \int Z d^3 x \rho(\vec{x}) (3z^2 - r^2). \quad (1.25)$$

Как известно, электрический квадрупольный момент частицы является мерой отклонения симметрии распределения электрических зарядов от сферической. Для ядра Ze с моментом количества движения, или спином \vec{J} , направленным вдоль оси z (рис.1), плотность заряда в точке $\vec{r} = (x, y, z)$ равна $Ze\rho(\vec{r})$. Согласно определению для классического квадрупольного момента

$$Q = Z \int d^3 r (3z^2 - r^2) \rho(\vec{r}) = Z \int d^3 r r^2 (3 \cos^2 \theta - 1) \rho(\vec{r}), \quad (1.26)$$

где θ – угол между \vec{r} и \vec{J} .

Для сигарообразного ядра $Q > 0$, для дискообразного ядра $Q < 0$. Величина Q имеет размерность площади и измеряется в см^2 или в барнах ($1\text{б} = 10^{-24}\text{см}^2$). Во внешнем неоднородном электрическом поле ядро, обладающее квадрупольным моментом, приобретает дополнительную энергию, зависящую от ориентации ядра относительно градиента поля.

Другими словами, в электрическом поле, с градиентом V_{zz} , энергия ядра с квадрупольным моментом Q зависит от ориентации спина \vec{J} относительно направления V_{zz} .

Поэтому интеграл для Q это просто выражение для ядерного квадрупольного момента при условии, что ядерный спин направлен по оси квантования z (рис. 1).

Однако в общем случае ядерный спин \vec{J} будет направлен в каком-либо другом направлении, характеризуемом магнитным квантовым числом m , как на рисунке 2.

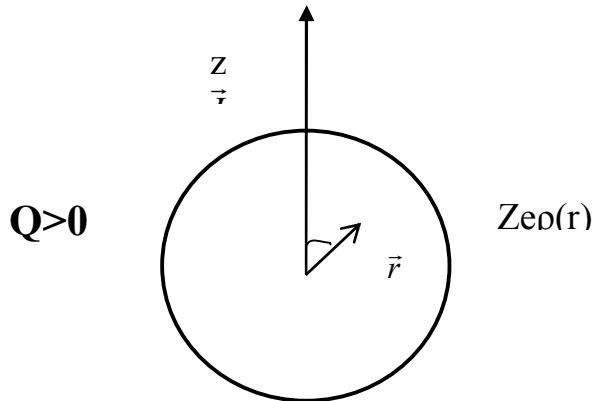


Рис. 1. Квадрупольный момент сигарообразного ядра

Подставив Q в интеграл, получим, используя \vec{J} и m :

$$H_Q = \frac{1}{4} e V_{zz} Q \frac{3m^2 - J(J+1)}{J(2J-1)}. \quad (1.27)$$

Электрическое квадрупольное взаимодействие приводит, таким образом, к расщеплению уровней энергии ядра со спином $J \geq 1$.

Расщепление пропорционально величине Q и ГЭП V_{zz} . Состояния с $+m$ и $-m$ обладают одинаковой энергией.

Таким образом, в частном случае регистрации ядерного гамма-резонанса монопольный член $H(E1)$ проявляется в виде изомерного (химического) сдвига спектров ЯГР:

$$\delta = \frac{4\pi}{5} e^2 z R^2 (\Delta R/R) \left\{ |\psi(0)|_a^2 - |\psi(0)|_s^2 \right\}, \quad (1.28)$$

где R – зарядовый радиус ядра в основном состоянии, ΔR – его изменение при переходе ядра из возбужденного в основное, $|\psi(0)|^2$ – зарядовая плотность электронов в области ядра, индексы “a” и “s” относятся к поглотителю и источнику гамма-квантов, соответственно. Считая вклады ионных остовов в зарядовую плотность не зависящими от типа химической связи, из (1.28) можно прийти к выводу, что δ определяется заселенностью валентных s-состояний поглотителя, измеренной относительно стандартного источника (или наоборот).

Квадрупольное взаимодействие описывает третий член гамильтониана СТБ:

$$H(E2) = \bar{Q}(\vec{\nabla} \vec{E}), \quad (1.29)$$

где Q – тензор ядерного квадрупольного момента, а $\vec{\nabla} \vec{E}$ – тензор градиента электрического поля (ГЭП) в области ядра.

Собственные значения выражения (1.29):

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

$$m_I = I, I-1, -I$$

$$I = \frac{3}{2} (\text{для } ^{57}\text{Fe}), \quad (1.30)$$

где I – спин ядра, m_I – магнитное квантовое число,
 $eq = \partial^2 U / \partial z^2$, $-z$ – компонента ГЭП (V_{zz}),

U – потенциал, создаваемый на ядре окружающими его электрическими зарядами, $\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}$ – параметр асимметрии,

$V_{xx} = \partial^2 U / \partial x^2$, $V_{yy} = \partial^2 U / \partial y^2$ – компоненты тензора ГЭП (x и y).

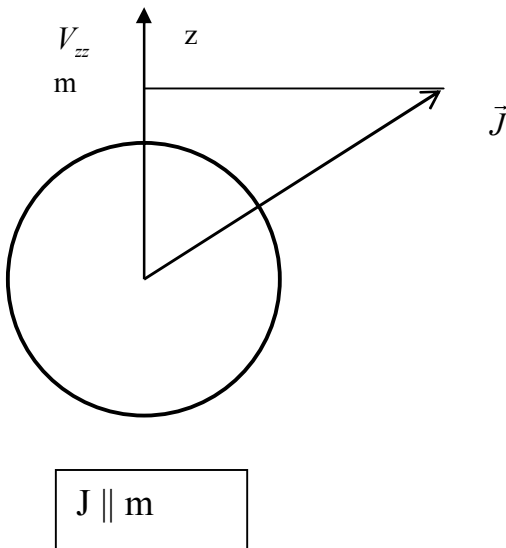


Рис. 2. Квантование в случае квадрупольного взаимодействия

Из (1.30) следует, что электрическое квадрупольное взаимодействие приводит к частичному снятию вырождения ядерных уровней, в то время как электрическое монопольное – только к их сдвигу.

1.3. Магнитное сверхтонкое взаимодействие

Во внешнем электромагнитном поле на частицу с зарядом q и скоростью \vec{v} действует сила Лоренца:

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \frac{1}{c} \vec{v} \times \vec{B}). \quad (1.31)$$

Согласно формуле Лоренца, взаимодействие частицы с электромагнитным полем определяется ее полным зарядом. Весьма примечательным и до сих пор непонятным фактом является то, что заряды частиц всегда равны целому кратному элементарного кванта заряда e . В силу этого обстоятельства полный заряд орбитальной частицы дает очень небольшую информацию об ее структуре. Об этом можно судить по магнитному дипольному моменту.

Введем магнитный дипольный момент. Чисто классически вращающаяся вокруг своей оси электрически заряженная частица создает круговой электрический ток, который в свою очередь порождает магнитный дипольный момент. Круговой электрический ток порождает магнитный момент $\vec{\mu}$, который направлен перпендикулярно плоскости с витком тока. Если электрический заряд размазан по частице, то он будет вращаться вместе с частицей, что приводит к возникновению круговых токов, создающих магнитный дипольный момент $\vec{\mu}$.

Взаимодействие с внешним магнитным полем \vec{B} , согласно классической электродинамике, для замкнутого тока дает следующую энергию:

$$E_{\text{маг}} = -\vec{\mu} \vec{B} . \quad (1.32)$$

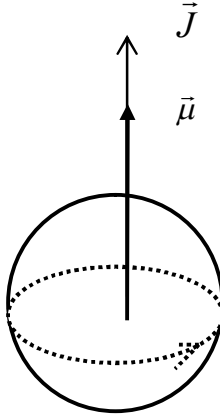


Рис. 3. Схема образования магнитного момента μ

Выражение $\vec{\mu} = \frac{1}{c} (\text{ток} \times \text{площадь})$ дает величину магнитного момента. Направление вектора магнитного момента $\vec{\mu}$ перпендикулярно плоскости кругового тока; положительное направление тока образует с $\vec{\mu}$ правый винт. Связь между $\vec{\mu}$ и \vec{J} можно найти, рассмотрев частицу с зарядом q , движущуюся со скоростью \vec{V} по круговой орбите радиуса r . Частица обращается с частотой $\frac{V}{2\pi r}$ (Гц), то есть результирующий ток равен $\frac{qV}{2\pi r}$.

Учитывая, что $\vec{L} = \vec{r} \times \vec{p}$, получим $\vec{\mu} = \frac{q}{2mc} \vec{L}$.

Этот результат страдает двумя недостатками:

1. Он выведен на основе классических представлений;
2. Он получен для точечной частицы на круговой орбите.

Вместе с тем этот результат этот результат отражает два важных обстоятельства:

1. Вектор $\vec{\mu}$ направлен по вектору орбитального момента количества движения \vec{L} ,
2. Отношение μ/L равно $\frac{q}{2mc}$.

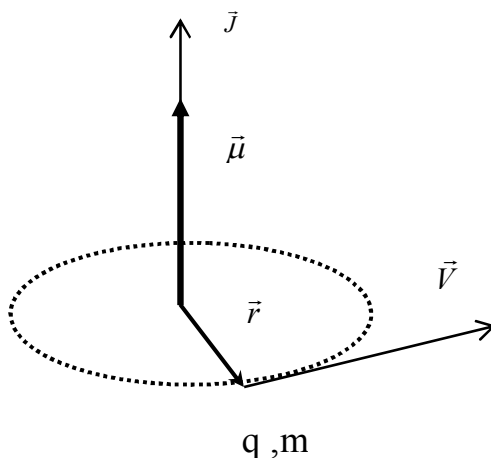


Рис. 4. Точечная частица на круговой орбите

Эти два факта указывают путь для построения квантовомеханического оператора $\vec{\mu}$, который должен быть направлен по \vec{J} , так как не существует иного преимущественного (выделенного) направления в пространстве. Таким образом:

$$\vec{\mu} = \text{Const} \cdot \vec{J}. \quad (1.33)$$

Коэффициент пропорциональности должен иметь размерность $\frac{e}{mc}$ и поэтому его удобно записывать в виде $g \cdot (\frac{e}{2mc})$. Новая постоянная g является безразмерной, она характеризует величину отклонения значения реального магнитного момента от классического значения $\frac{e}{2mc}$. Тогда $\vec{\mu} = g \frac{e}{2mc} \vec{J}$.

Величина \vec{J} измеряется в тех же единицах, что и \hbar , поэтому \vec{J} / \hbar – величина безразмерная. Так что:

$$\vec{\mu} = g \mu_0 \vec{J} / \hbar; \quad \mu_0 = \frac{e}{2mc}, \quad (1.34)$$

где μ_0 – магнетон и представляет собой единицу измерения магнитных моментов. В атомной физике при решении задач, связанных с движением электронов, для расчета магнетона используют массу электрона, m_e и соответствующая единица магнитного момента называется магнетоном Бора:

$$\mu_B = \frac{e}{2m_e c} \cdot \hbar = 0,5788 \cdot 10^{-14} \text{ МэВ/Гс}. \quad (1.35)$$

В субатомной физике магнитные моменты частиц выражаются в ядерных магнетонах. Ядерный магнетон получим, взяв $m = m_p$ (протона):

$$\mu_N = \frac{e}{2m_p c} \cdot \hbar = 3,4525 \cdot 10^{-18} \text{ МэВ/Гс.} \quad (1.36)$$

Взаимодействие частицы с магнитным моментом $\vec{\mu}$ и энергетические уровни в магнитном поле \vec{B} определяются из уравнения Шредингера:

$$H\psi = E\psi . \quad (1.37)$$

в котором используется гамильтониан имеющий вид:

$$H = H_0 + H_{mag} = H_0 - \vec{\mu}\vec{B} = g\vec{\mu}_0\vec{J}\vec{B} / \hbar . \quad (1.38)$$

Гамильтониан H_0 , не зависящий от спина, имеет значения энергии E_0 , определяемые из уравнения $H_0\psi = E_0\psi$. Для нахождения значений энергии, отвечающих полному гамильтониану, ось z удобно выбрать в направлении магнитного поля так, чтобы $\vec{J}\vec{B} = J_z B_z \equiv J_z B$.

По аналогии с оператором орбитального момента количества движения оператор \vec{J} удовлетворяет в точности таким же уравнениям на собственные значения:

$$\vec{J}^2 \Psi_{JM} = J(J+1) \hbar^2 \cdot \Psi_{JM} ,$$

$$J_z \Psi_{JM} = M \hbar \cdot \Psi_{JM} . \quad (1.39)$$

Величина M принимает $(2J+1)$ значений, от $-J$ до $+J$,

сдвинутых друг относительно друга на единицу. Тогда собственными значениями гамильтониана будут величины:

$$E = E_0 - g\mu_0 MB. \quad (1.40)$$

Соответствующее этой формуле зеемановское расщепление ядерного уровня для $J = \frac{3}{2}$ показано на рис. 4.

Величину расщепления, т. е. разность энергий между парой соседних зеемановских уровней $\Delta E = g\mu_0 B$, определяют экспериментально. Отсюда, зная ΔE , легко получить g . Обычно приводятся значения не g , а значение $\mu = g\mu_0 J$.

Величина $2\mu B$ представляет собой полное значение величины зеемановского расщепления, где μ – среднее значение оператора $\vec{\mu}$ в состоянии $M = J$.

Таким образом, собственные значения уровней ядра со спином в магнитном поле \vec{B} равны:

$$-\mu B; -\frac{\mu B(J-1)}{J}; -\frac{\mu B(J-2)}{J}; \dots + \frac{\mu JB}{J}. \quad (1.41)$$

Имеется $(2J+1)$ собственных значений, тогда, обозначив $m_J = J, (J-1) \dots (J-2)$, получим:

$$E_\mu = \frac{\mu B m_J}{J}. \quad (1.42)$$

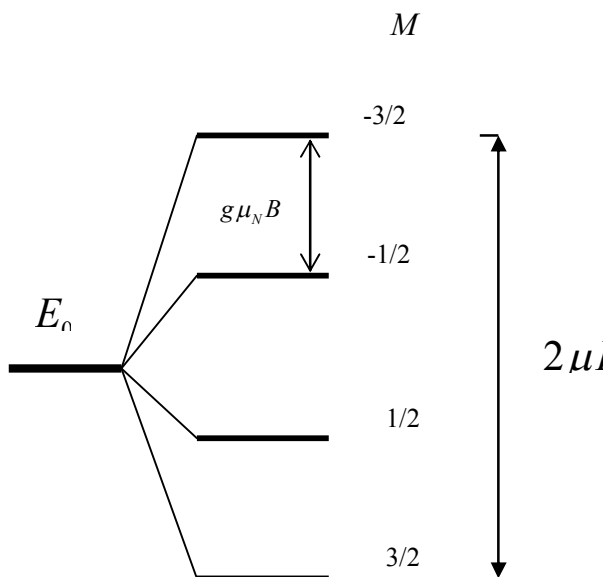


Рис. 5. Расщепление ядерного уровня $J = 3/2$ во внешнем магнитном поле.

Магнитный дипольный член гамильтониана СТВ является суммой следующих членов:

$$H(M1) = \frac{16\pi}{3} \mu_3 \gamma_N \hbar \sum_i \vec{I} \vec{S}_i \delta(\vec{r}_i) +$$

$$\begin{aligned}
& 2 \mu_3 \gamma_N \hbar \sum_i \left\{ \frac{\vec{I} \vec{S}_i}{r_i^3} - \frac{3 (\vec{I} \vec{r}_i) (\vec{S}_i r_i)}{r_i^3} \right\} + \\
& \frac{\gamma_N e \hbar}{m c} \sum_i \frac{\vec{I}_i \vec{L}_i}{r_i^3} .
\end{aligned} \tag{1.43}$$

Здесь μ_3 – магнетон Бора, γ_N – ядерный магнетон, $\vec{I}, \vec{S}_i, \vec{L}_i$ – операторы ядерного спина и электронных, спинового и орбитального моментов, соответственно, $\delta(r_i)$ – дельта-функция Дирака, m – масса электрона, c – скорость света, r_i – радиус-вектор i -ого электрона. Первый член в (1.43) соответствует контактному взаимодействию Ферми между магнитным моментом ядра и атомным спиновым моментом. Второй связан с диполь-дипольным взаимодействием магнитных моментов ядра и электрона. Третий определяется взаимодействием между ядерным спином и орбитальным атомным моментом. Кроме того, в (1.43) включаются члены, связанные с взаимодействием электронных орбитального и спинового момента с внешним магнитным полем, искажением замкнутых электронных оболочек собственного атома под влиянием внешнего магнитного поля. Собственные значения энергии магнитного члена гамильтониана СТВ:

$$E_m = - \frac{\mu H m_i}{I} . \tag{1.44}$$

где μ – ядерный магнитный момент, H – суммарное магнитное поле на ядре. Магнитное сверхтонкое взаимодействие приводит к полному снятию вырождения ядерных уровней.

В случае, когда направление магнитного поля H совпадает с одной из главных осей тензора ГЭП, уровни возбужденного состояния ядра Fe^{57} даются выражениями [1,2]:

$$E = \frac{1}{2} g_e \beta_n H \pm \frac{1}{4} e 2qQ \left[\left(1 + \frac{g_e \beta_n H}{\frac{1}{4} e 2qQ} \right)^2 + \frac{1}{3} \eta^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (1.45)$$

$$F = -\frac{1}{2} g_e \beta_n H \pm \frac{1}{4} e 2qQ \left[\left(1 - \frac{g_e \beta_n H}{\frac{1}{4} e 2qQ} \right)^2 + \frac{1}{3} \eta^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (1.46)$$

В этом случае значение $H_{\text{ЭТМ}}$ можно определить из разности положений четвертой и второй, или пятой и третьей линий:

$$g_g \beta_n H = \nu_4 - \nu_2 = \nu_5 - \nu_3, \quad (1.47)$$

где β_n – ядерный магнетон, g_g – гиромагнитное отношение в основном состоянии ядра. Выражение для ∇E_Q имеет вид:

$$\nabla E_Q = \left\{ \frac{1}{2} \left[(E_1 + E_2)^2 + (E_2 + E_3)^2 \right] - (E_1 + E_3)^2 \right\}^{\frac{1}{2}}. \quad (1.48)$$

Здесь E_1, E_2, E_3 – разности уровней энергии возбужденного состояния, расщепленного магнитным взаимодействием.

Следует заметить, что полная теория СТВ в твердых телах базируется на хартри-фоковских решениях для многоэлектронных систем.

1.4. Динамика колебаний атомов

Исходя из весьма общих предположений [2], можно показать, что среднеквадратичные смещения $\langle x^2 \rangle$ и среднеквадратичные скорости $\langle v^2 \rangle$ атомов в твердых телах определяются интегралами по функции распределения частот колебаний атомов твердого тела $J(\omega)$ и не чувствительны к тонким деталям фононного спектра:

$$\langle x^2 \rangle = \frac{\hbar}{2M} \int_0^{\infty} \coth \left(\frac{\hbar \omega}{2kT} \right) \frac{J(\omega)}{\omega} \omega d\omega, \quad (1.49)$$

$$\langle v^2 \rangle = \frac{3\hbar}{2M} \int_0^{\infty} \coth \left(\frac{\hbar \omega}{2kT} \right) J(\omega) \omega d\omega, \quad (1.50)$$

где M – масса атома, k – постоянная Больцмана и проведено усреднение по всем кристаллографическим направлениям. Введя моменты фонового спектра:

$$\omega(n) = \int_0^{\infty} J(\omega) \omega^n d\omega, \quad \omega(0) = 1 \quad (1.51)$$

можно представить (1.49) и (1.50) в виде разложений в ряд в случае высоких и низких температур:

$$\langle x^2 \rangle_T = \frac{kT}{M} \left[\omega(-2) + \frac{1}{12} \left(\frac{\hbar}{kT} \right)^2 - \frac{1}{720} \left(\frac{\hbar}{kT} \right)^4 \omega(2)_T \dots \right], \quad (1.52)$$

$$\langle v^2 \rangle_T = \frac{3kT}{M} \left[1 + \frac{1}{12} \left(\frac{\hbar}{kT} \right)^2 \omega(2) - \frac{1}{720} \left(\frac{\hbar}{kT} \right)^4 \omega(4) \dots \right], \quad (1.53)$$

$$T \geq \frac{1}{2} \vartheta_D,$$

$$\langle x^2 \rangle_0 = \frac{\hbar}{2M} \omega(-1), \quad (1.54)$$

(ϑ_D – температура Дебая)

$$\langle v^2 \rangle_0 = \frac{3\hbar}{2M} (\omega 1), \quad T \rightarrow 0. \quad (1.55)$$

Величины $\langle x^2 \rangle$ и $\langle v^2 \rangle$ экспериментально могут быть определены методом ЯГР (эффекта Мессбауэра), поскольку в гармоническом приближении теории кристаллов вероятность эффекта Мессбауэра

$$f = \exp(-\langle x^2 \rangle / \tilde{\lambda}^2), \quad (1.56)$$

где $\tilde{\lambda} = \lambda / 2\pi$ – приведенная длина волны резонансного γ -излучения, а δE – доплеровский сдвиг второго порядка:

$$\delta E = -\langle v^2 \rangle / 2c. \quad (1.57)$$

Экспериментально измеряемое значение $\delta_{из}$ является результирующим двух сдвигов: сдвига, определяемого распределением электронной плотности – изомерного сдвига $\delta_{хим}$, и сдвига, определяемого среднеквадратичной скоростью колебаний ядер – температурного сдвига $\delta_{темп}$ [2]:

$$\delta_{из} = \delta_{хим} + \delta_{темп}. \quad (1.58)$$

Для оценки влияния локального окружения необходим учет $\delta_{темп}$.

В рамках эйнштейновской модели твердого тела для $\delta_{\text{тем}}$ можно получить выражение:

$$\delta_{\text{тем}} = \frac{3}{4} \frac{\hbar \omega_E}{M} \text{cth} \left(\frac{\hbar \omega_E}{2kT} \right). \quad (1.59)$$

Значения ω_E можно определить из температурной зависимости вероятности эффекта:

$$\frac{R}{\hbar \omega_E} \left[\text{cth} \left(\frac{\hbar \omega_E}{2kT_2} \right) - \text{cth} \left(\frac{\hbar \omega_E}{2kT_1} \right) \right] - \ln \frac{fT_1}{fT_2} = 0. \quad (1.60)$$

При исследовании температурной зависимости f можно определить среднеквадратичные амплитуды и скорости колебаний атомов, сделать выводы о координационном числе, жесткости связи, влиянии локального окружения, изучить фононный спектр твердого тела. О принципиальной возможности непосредственного получения фононного спектра из данных ЯГР по измерениям однофононных процессов указывалось в [2]. Недавно экспериментально с помощью ЯГР наблюдались однофононные процессы.

1.5. Диффузия и релаксация

Время жизни ядра в возбужденном состоянии τ и частота ларморовской прецессии спина ядра ω_L определяют нижний предел измерения времени релаксации флуктуаций зарядовой и спиновой электронных плотностей на ядре. Магнитные и электрические поля ядра могут считаться стационарными, если выполняется условие $\tau \omega_L \gg 1$. Если $\tau \omega_L \ll 1$, что происходит, например, при температурах выше температур Кюри или Неэля магнитоупорядоченных твердых тел, то среднее за время τ магнитное поле на ядре равно нулю и снятия вырождения ядерных уровней за счет сверхтонкого магнитного взаимодействия не происходит [2].

В области $\tau\omega \sim 1$ наблюдаются релаксационные явления. Для монопольного члена гамильтониана СТВ (1.1) нижний предел стационарных условий определяется временем τ . Этот предел в ЯГР можно уменьшить в несколько раз с помощью методики временной фильтрации.

Флуктуации зарядовой плотности в случае монопольного члена гамильтониана СТВ могут быть вызваны существованием короткоживущих валентных состояний атомов в твердом теле с различными заселенностями s -состояний (вызванных, например, ударной ионизацией атомных электронных оболочек при k -захвате). В целом наличие таких флуктуаций приведет к изменению во времени изомерного сдвига спектров ЯГР, а также уширению или расщеплению спектральных линий.

Быстрые изменения заселенности p - и d -состояний приведут к флуктуациям ГЭП, как и другие причины изменения локального ГЭП (например, диффузионные перескоки атомов в ближайших координационных сферах ядра-информатора).

Флуктуации магнитного поля на ядре по величине и знаку могут происходить как при стационарном во времени, так и флуктуирующем по величине и знаку ГЭП. Смещения ядерных уровней, происходящие под влиянием комбинированного влияния магнитного поля и ГЭП на ядре, аналитически могут быть предсказаны только для некоторых предельных случаев.

Среднеквадратичные смещения $\langle x^2 \rangle$ и среднеквадратичные скорости $\langle v^2 \rangle$ могут существенно возрастать в течение малых времен локального нагрева кристаллической решетки при взаимодействии заряженной частицы или нейтрона с веществом. Если характерное время релаксации остывания перегретой локальной области порядка τ , то исследование этих областей возможно с помощью метода ЯГР для вероятности эффекта Мессбауэра и доплеровского сдвига второго порядка. Одновременно с локальным нагревом могут происходить изменения локального окружения ядра, включая изменения, связанные с химическими превращениями, что скажется на соответствующих членах гамильтониана СТВ.

Приведем в качестве примера величину времени жизни возбужденного состояния $\tau = 9,78 \cdot 10^{-8}$ с для мессбауэровского ядра

^{57}Fe . В экспериментах прецессионного типа по изучению углового распределения ядерных излучений величины τ могут быть на несколько порядков меньше, но возможность изучения релаксационных процессов ограничивается временем быстрого действия аппаратуры ($10^{-10} - 10^{-11}$ с). Поэтому в настоящее время методики, исследующие СТВ, пока нельзя привлечь к изучению быстропротекающих процессов в каскаде столкновений, тепловом пике, а также рождения и аннигиляции пар Френкеля при подпороговых энергиях.

Если атомы участвуют в диффузионном движении и за время, сравнимое с временем жизни мессбауэровского уровня, изменяется их положение, то линия уширяется на $\Delta\Gamma_D$.

В случае непрерывной диффузии с коэффициентом D :

$$\Delta\Gamma_D = (2E_0^2 / hc^2) D. \quad (1.61)$$

Таким образом, увеличение полуширины линии резонанса в случае ЯГР пропорционально коэффициенту диффузии, т. е. $\Delta\Gamma_D \sim D$, но такая простая зависимость имеет место не всегда. В случае больших значений D имеет соотношение $\Delta\Gamma_D \sim \sqrt{D}$, и уширение линии носит доплеровский характер.

Для ^{57}Fe уширение линии происходит, если D превышает 10^{-11} см²/с. Для вращательного броуновского движения:

$$\Delta\Gamma_D = 2\hbar^2 k^2 R^2 / 3\tau_{De\theta}, \quad (1.62)$$

где R – радиус молекулы, $\tau_{De\theta} = 4\pi\eta R^2 / kT$ – дебаевский параметр для броуновского вращения. Для диффузии за счет перескоков атомов из одного положения в другое уширение линии дается формулой

$$\Delta\Gamma_D = 2\hbar / \tau; \quad \tau \approx b^2 / 6D, \quad (1.63)$$

где τ – время локализации атомов; b – расстояние между отдельными перескоками; D – коэффициент диффузии за счет перескоков. Для ^{57}Fe заметное уширение линии должно быть при $\tau \leq 10^{-7}\text{с}$ и $D > 10^{-9}\text{см}^2/\text{с}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Фрауэнфельдер, Э. Хенли. Субатомная физика. – М.: «Мир», 1979. – 736 с.
2. В. В. Чекин, В. Г. Кириченко, Э. А. Резниченко. Сверхтонкие взаимодействия и радиационные повреждения в металлах и сплавах. – «Вища школа»: Харьков, 1986. – 136 с.
3. Альфа, бета и гамма-спектроскопия. / Под ред. Зигбана К. М. – М.: Атомиздат, 1969. – 675 с.
4. Эффект Мессбауэра / Сб. переводов под ред. Ю. Кагана. – М.: ИИЛ, 1962. – 444 с.
5. Эффект Мессбауэра / Сб. переводов под ред. Н. А. Бургова, В. А. Скляревского. – М.: Атомиздат, 1969. – 438 с.
6. Штинель В. С. Резонанс гамма лучей в кристаллах. – М.: Наука, 1969. – 407 с.
7. Химические применения мессбауэровской спектроскопии. / Под ред. В. И. Гольданского, Р. Гербера. – М.: Мир, 1970. – 503 с.
8. Сверхтонкие взаимодействия в твердых телах / Пер. с англ. под ред. А. Турова. – М.: Мир, 1970. – 368 с.
9. Суздаев И. П. Динамические эффекты в гамма-резонансной спектроскопии. – М.: Атомиздат, 1979. – 192 с.