ГЛАВА II

ОСНОВЫ МЕССБАУЭРОВСКОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

§1. Схема проведения эксперимента. Мессбауэровский спектрометр

На рис. 2.1 представлена функциональная схема мессбауэровского спектрометра в наиболее часто используемой геометрии – геометрии пропускания (поглощения, прохождения).

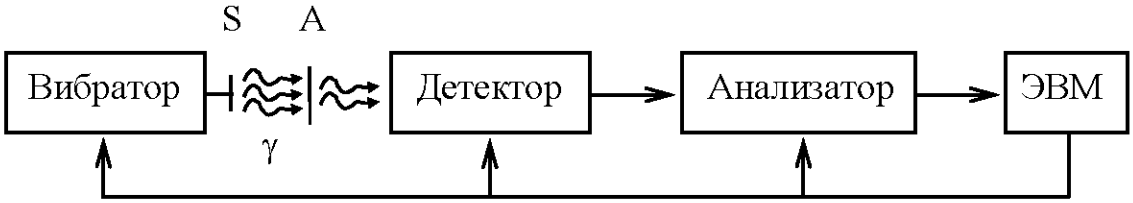

Рис. 2.1. Функциональная схема мессбауэровского спектрометра

Здесь S – двигающийся источник γ-квантов мессбауэровского перехода (мессбауэровский источник), A – покоящийся поглотитель (в геометрии рассеяния – рассеиватель), как правило исследуемый образец. Исследуемый образец, содержащий материнские ядра, может выступать и в качестве источника. В этом случае поглотитель – эталонный образец. Возможен также вариант двигающегося поглотителя и покоящегося источника.

Составные части мессбауэровского спектрометра и их функции:

- **вибратор** (обычно электродинамический) – обеспечение заданной формы временной зависимости доплеровской скорости $\upsilon(t)$ движения источника относительно поглотителя (обратная связь с ЭВМ);
- **детектор** – регистрация актов или резонансного поглощения (рассеяния, испускания) γ-квантов, или испускания электронов конверсии, или испускания вторичных рентгеновских квантов; формирование электрических импульсов;
- **анализатор** – дискриминация, сортировка и накопление электрических импульсов;
- **ЭВМ** – сбор информации и управление электронными блоками мессбауэровского спектрометра.

Режимы работы спектрометра:

- **амплитудный анализ** – регистрация интенсивности счета электрических импульсов в зависимости от их амплитуды (энергии γ-квантов);
- **регистрация спектра** с различными временными законами периодического (с периодом T ~ 0.1 с) изменения доплеровской скорости движения источника относительно поглотителя (рис. 2.2):

а – постоянных ускорений пилообразной формы;
б – постоянных ускорений треугольной формы;
в – постоянных скоростей;
г – постоянных скоростей с фиксацией счета в "нулевом" канале;
д – трапециидальный закон;
е – гармонический закон.

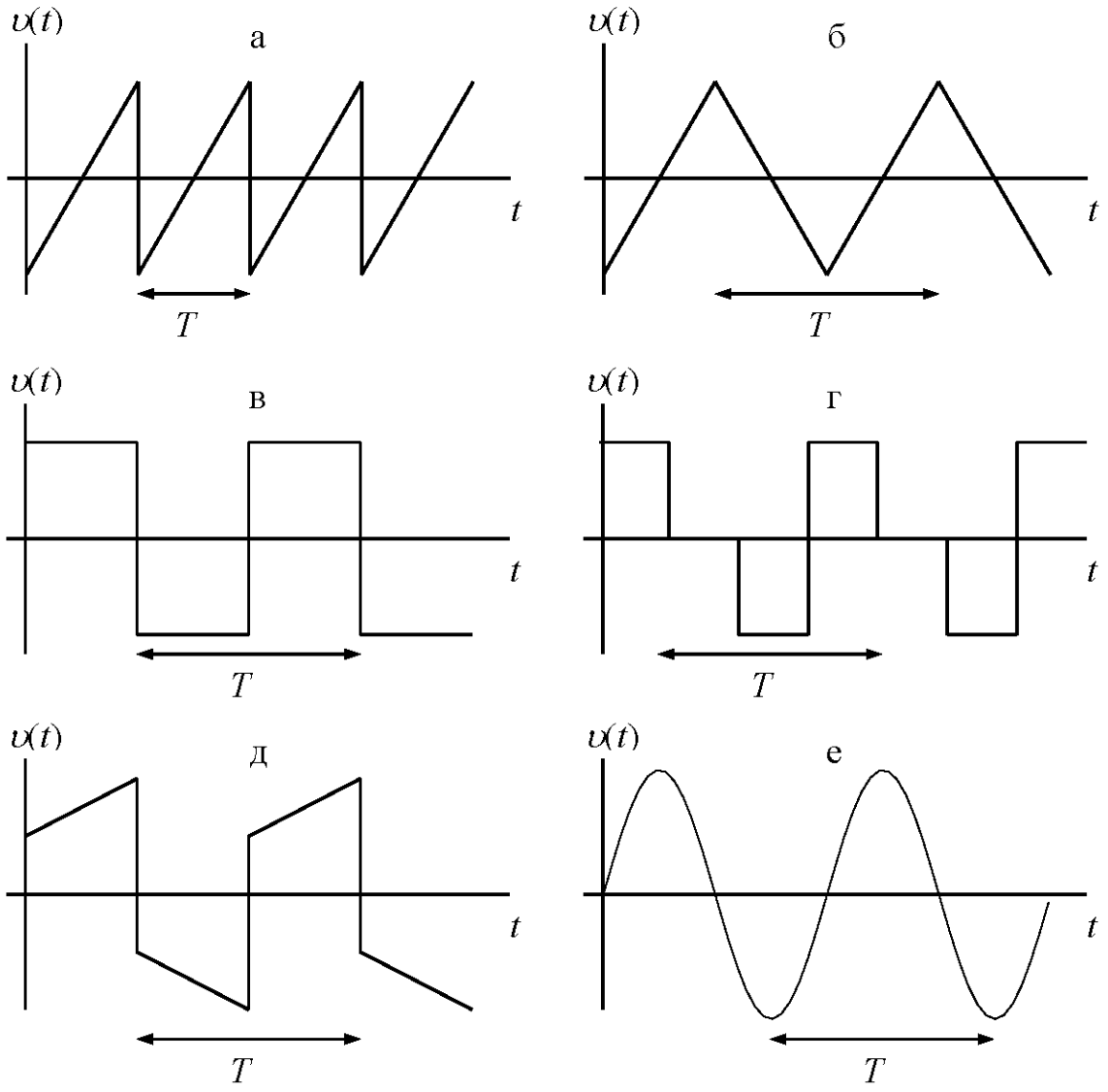

Рис. 2.2. Законы изменения доплеровской скорости движения источника относительно поглотителя

Отличительные особенности в реализации каждой из форм движения:

а – часто используемая форма движения;

б – одновременно снимаются два спектра, зеркально отображенных по шкале доплеровских скоростей; при сложении этих спектров в суще-

ственной мере исключается так называемый "геометрический эффект" (см. §6); предпочтительная для использования форма движения;

в – требуется высокая степень временной стабилизации параметров электронной части регистрирующей аппаратуры;

г – позволяет учесть временное изменение параметров электронной части регистрирующей аппаратуры, но для получения спектра с тем же качеством требует в ~3 раза больше времени регистрации, чем в случае (а) или (б);

д – позволяет экономить время проведения эксперимента путем съемки только интересующих областей спектра;

е – практически нет переходных процессов, требующих в случаях форм (а) – (д) так называемого "мертвого времени", в течение которого не происходит регистрация импульсов; однако при этом спектр получается на неравномерной сетке значений доплеровской скорости υ_i, причем возрастание плотности каналов приходится, как правило, на области скоростей, где отсутствует резонансное поглощение.

Методы регистрации спектра.

Что регистрируется (d – глубина проникновения или выхода из образца излучения – область образца, формирующего мессбауэровский спектр):

- γ-кванты ($d \sim 100$ мкм),
- электроны конверсии ($d < \sim 0.3$ мкм, показатель экспоненты в функции выхода – ~ 0.04 мкм),
- рентгеновское вторичное излучение ($d \sim 20$ мкм), которое сопровождает вылет электронов конверсии.

Чем регистрируется:

- сцинтиляционный детектор (например NaJ(Tl)),
- газовый пропорциональный счетчик,
- полупроводниковый детектор,
- резонансный детектор (регистрируется вторичное излучение резонансного поглотителя-конвертера, находящегося внутри неподвижного относительно источника детектора, при этом движется исследуемый образец).

В результате регистрации излучения формируется временная последовательность электрических импульсов, соответствующих различным доплеровским скоростям в соответствии с законом изменения скорости $\upsilon(t)$ движения источника относительно поглотителя (рис. 2.2).

Геометрия эксперимента:

- пропускания (поглощения, прохождения),
- рассеяния (в том числе обратного).

Для сравнения в качестве примера на рис. 2.3 приведены схемы регистрации мессбауэровских спектров, получаемых путем регистрации γ-

квантов в геометрии на прохождение (а) и электронов конверсии в геометрии обратного рассеяния (б). В первом случае мессбауэровский спектр несет в себе информацию со всего объема образца, пронизанного γ-квантами источника, во втором – из приповерхностной ($d < \sim 0.3$ мкм) области, из которой электроны конверсии смогли выйти на заднюю поверхность образца и были зарегистрированы детектором. В первом случае образец должен быть достаточно тонким, во втором – может быть со значительно большей толщиной.

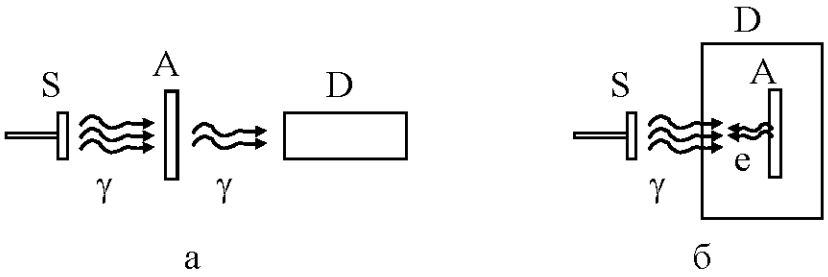

Рис. 2.3. Схемы регистрации мессбауэровских спектров, полученных путем регистрации γ-квантов в геометрии на прохождение (а) и электронов конверсии в геометрии обратного рассеяния (б): S, A и D – мессбауэровский источник, поглотитель и детектор соответственно

§2. Мессбауэровский спектр

Мессбауэровский спектр $N(\upsilon_i) \equiv N_i$ – зависимость интенсивности счета зарегистрированных актов резонансного поглощения, испускания или рассеяния (фактически числа электрических импульсов, сформированных детектором и зарегистрированных анализатором в течение строго задаваемого интервала времени) от доплеровской скорости υ_i (i – номер канала) движения источника относительно поглотителя.

2.1. Мессбауэровский спектр и эффект Доплера

В общем случае произвольного движения далекого источника излучения относительно поглотителя ($l >> \upsilon T$, где l – расстояние между источником и поглотителем, υ – модуль скорости движения ядра-излучателя относительно ядра-поглотителя; T – период электромагнитных колебаний) энергии испускаемого источником E_0 и поглощаемого поглотителем E_γ γ-квантов связаны соотношением (см. п. 7 в Приложении I):

$$E_\gamma = E_0 \frac{\sqrt{1-(\upsilon/c)^2}}{(1-\upsilon/c \cdot \cos\vartheta)}, \qquad (2.1)$$

где ϑ – угол между направлением скорости υ движения ядра-излучателя и волновым вектором $\boldsymbol{k}_\gamma$ γ-кванта (направлением на ядро-поглотитель) (рис. 2.4).

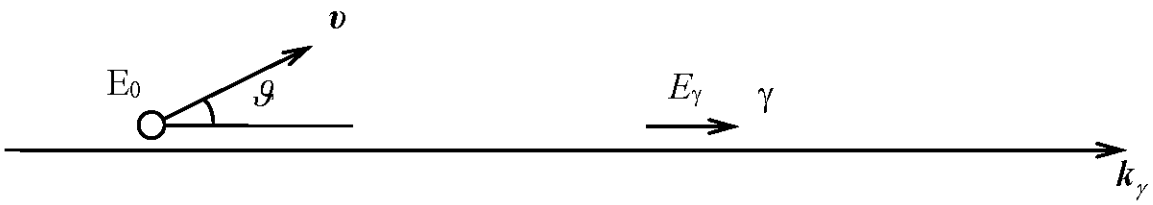

Рис. 2.4. Схематическое изображение процесса излучения γ-кванта ядром, движущимся со скоростью $\boldsymbol{\upsilon}$

Заметим, что в случае мессбауэровской спектроскопии условие далекого источника $l >> \upsilon T$ выполняется очень хорошо, поскольку при характерных значениях $\upsilon_{\max} \sim 10$ мм/с, $l \sim 10$ см и $E_0 \sim 14.4$ кэВ:

$$\upsilon T \cong \upsilon T_0 = \upsilon \frac{1}{\nu_0} = \upsilon \frac{h}{E_0} \cong$$

$$\cong 10 \cdot 10^{-3} \frac{6.63 \cdot 10^{-34}}{14.4 \cdot 10^3 \cdot 1.6 \cdot 10^{-19}} \cong 3 \cdot 10^{-21}\,\text{м} << l \sim 10^{-1}\,\text{м}.$$

В случае нерелятивистских скоростей движения источника $\upsilon << c$:

$$E_\gamma = E_0 \frac{\sqrt{1-(\upsilon/c)^2}}{1-\frac{\upsilon}{c}\cos\vartheta} \cong E_0\left(1+\frac{\upsilon}{c}\cos\vartheta\right). \qquad (2.2)$$

Как видим, изменение энергии γ-кванта зависит от модуля скорости движения ядра-излучателя и угла между этой скоростью и волновым вектором γ-кванта.

В случае <u>продольного эффекта Доплера</u> ($\vartheta = 0$) и при малых скоростях движения источника ($\upsilon << c$) относительно поглотителя:

$$E_\gamma \cong E_0\left(1+\frac{\upsilon}{c}\right) = E_0 + E_0\frac{\upsilon}{c}. \qquad (2.3)$$

В этом случае изменение энергии γ-кванта линейно зависит от скорости движения ядра-излучателя. Следовательно, зависимость интенсивности счета электрических импульсов от доплеровской скорости движения источника относительно поглотителя (мессбауэровский спектр) есть по существу зависимость интенсивности счета от энергии поглощаемых γ-квантов.

В отсутствие сверхтонких расщеплений ядерных уровней мессбауэровский спектр будет выглядеть как одиночный синглет (рис. 2.5).

На рисунке изображены:

N_∞, $N_m = \chi N_\infty$, $N_{nm} = (1-\chi)N_\infty$ – интенсивности счета всех прошедших через дискриминатор импульсов в отсутствие резонанса, импульсов, соответствующих мессбауэровскому и не мессбауэровскому переходам соответственно;

χ – доля γ-квантов с энергией мессбауэровского перехода, так называемых "мессбауэровских" γ-квантов; эта доля зависит от амплитудного спектра прошедших через поглотитель γ-квантов и настройки окна дискриминатора (обычно $\chi \cong 0.7 \div 1$);

$\Delta N_{max} \equiv \Delta N(\upsilon_{max}) \equiv N_\infty - N(\upsilon_{max})$ – видимая величина эффекта в области максимального поглощения;

$\eta_{max} = \dfrac{\Delta N_{max}}{\chi N_\infty}$ – максимальная относительная величина эффекта (подробнее см. §3), равная видимой величине эффекта в области максимального поглощения, нормированной на интенсивность счета "мессбауэровских" γ-квантов в отсутствие резонанса (η_{max}~0.1).

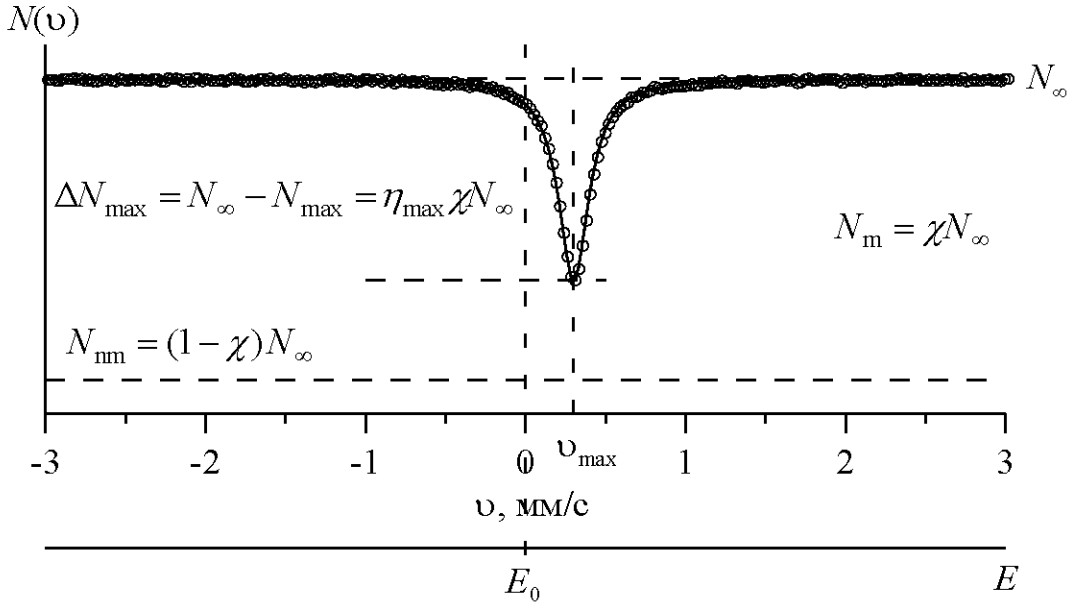

Рис. 2.5. Мессбауэровский спектр в отсутствие сверхтонких расщеплений ядерных уровней

Заметим, что после резонансного поглощения γ-кванта через время жизни ядра в возбужденном состоянии τ произойдет самопроизвольное испускание γ-кванта или электрона конверсии с той же энергией мессбауэровского перехода. Однако, этот акт испускания практически не будет зарегистрирован детектором, так как, во-первых, только $1/(1+\alpha)$ часть актов перехода сопровождается испусканием γ-кванта (α – коэффициент внутренней конверсии, см. п. 1.2 в Главе I) и, во-вторых, это испускание происходит равновероятно по всем направлениям.

Оценим скорость движения источника относительно поглотителя $\Delta\upsilon_\Gamma$, при которой энергия γ-кванта изменится на естественную ширину уровня (резонансной линии) Γ_τ. В соответствии с (2.3) можно записать:

$$\Gamma_\tau = \Delta E_\gamma \cong E_0 \frac{\Delta\upsilon_\Gamma}{c}, \ \Delta\upsilon_\Gamma \cong c\frac{\Gamma_\tau}{E_0}.$$

Для ядер ^{57}Fe $\Gamma_\tau \cong 5\cdot 10^{-9}$ эВ (см. п. 1.2 в Главе I), $E_0 \cong 14.41$ кэВ и

$$\Delta\upsilon_\Gamma \cong c\frac{\Gamma_\tau}{E_0} \cong 3\cdot 10^8 \frac{5\cdot 10^{-9}}{14.41\cdot 10^3} \cong 10^{-4}\,\text{м/с} = 0.1\,\text{мм/с}.$$

Оценим долю ρ испущенных после резонансного поглощения γ-квантов мессбауэровского перехода, которая регистрируется детектором с диаметром окна d_D:

$$\rho = \frac{\Omega}{4\pi} = \frac{\pi d_\text{D}^2/4}{4\pi\cdot l^2} = \frac{d_\text{D}^2}{16l^2} = \left(\frac{d_\text{D}}{4l}\right)^2,$$

где Ω – угловая апертура регистрации детектором вторичного излучения γ-квантов, l – расстояние от поглотителя до детектора.

Для $d_\text{D} \cong 2$ см и $l \cong 10$ см доля зарегистрированных γ-квантов равна $\rho \cong 2.5\cdot 10^{-3}$.

Оценим теперь статистику (интенсивность счета в отсутствие резонанса) N_∞, необходимую для обнаружения вклада от вторичного излучения γ-квантов N_sec^det. Для этого необходимо, чтобы величина этого вклада в регистрируемое излучение превышала стандартное отклонение статистических ошибок в спектре

$$N_\text{sec}^\text{det} \geq S_{N_\text{max}},$$

которая равна (см. (2.6)):

$$S_{N_\text{max}} = \sqrt{N_\text{max}} = \sqrt{N_\infty(1-\eta_\text{max}\chi)}.$$

Поскольку интенсивность вторично испущенных γ-квантов в резонансе N_sec дается выражением

$$N_\text{sec} = \Delta N_\text{max}\frac{1}{1+\alpha} = \frac{\eta_\text{max}\chi}{1+\alpha}N_\infty,$$

то величина вклада от вторичного излучения будет равна:

$$N_\text{sec}^\text{det} = N_\text{sec}\rho = \frac{\eta_\text{max}\chi}{1+\alpha}N_\infty\rho.$$

Подставляя все выписанные соотношения в исходное неравенство, получим:

$$\frac{\eta_\text{max}\chi N_\infty}{1+\alpha}\rho \geq \sqrt{N_\infty(1-\eta_\text{max}\chi)}.$$

Откуда условие для статистики в спектре N_∞ при $\chi = 0.7$,$\eta_{\max} = 0.1$, $\alpha = 8.2$, $\rho \cong 2.5 \cdot 10^{-3}$ примет вид:

$$N_\infty \geq (1-\eta_{\max}\chi)\left(\frac{1+\alpha}{\eta_{\max}\chi\rho}\right)^2 \cong 0.93 \cdot \left(\frac{1+8.2}{0.1 \cdot 0.7 \cdot 2.5 \cdot 10^{-3}}\right)^2 \cong 2.6 \cdot 10^9 \text{ имп.}$$

Заметим, что такая статистика, как правило, не достижима в эксперименте.

2.2. Мессбауэровский спектр и распределение Пуассона

Процесс регистрации импульсов N_i в канале i, (как и любой другой однородный во времени случайный процесс) контролируется распределением Пуассона (см. п. 3 в Приложении II). Действительно, пусть $\bar{\nu}$ – средняя частота актов испускания (поглощения, регистрации) γ-квантов. Найдем вероятность $P_t(N)$ испускания (поглощения, регистрации) N γ-квантов за фиксированное время t. Разобьем весь интервал t на малые интервалы $\Delta t \equiv t/n$ такие, что $n \equiv t/\Delta t >> < N >= \bar{\nu} t$ (рис. 2.6).

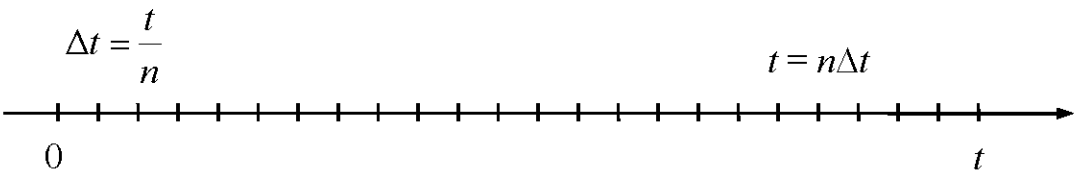

Рис. 2.6. Разбиение интервала времени наблюдения t

В этом случае с достаточной степенью точности можно считать, что в каждом интервале Δt испускается (поглощается, регистрируется) не более одного γ-кванта и рассмотрение любого интервала времени Δt можно рассматривать как испытание, при котором может произойти событие А – испускание γ-кванта.

Следовательно, вероятность $P_t(N) = P_n(N)$ – это вероятность того, что при n испытаниях N раз реализуется событие А, вероятность реализации которого при одном испытании $p \to 0$ при $n \to \infty$, причем $np \to const$. Как видим, процесс испускания (поглощения, регистрации) γ-квантов контролируется (описывается) предельным случаем биномиального распределения – распределением Пуассона $P(N)$, а это значит, что

$$P_n(N) = C_n^N p^N (1-p)^{n-N} \xrightarrow[n\to\infty,\, p\to 0]{} P_t(N) = \frac{< N >^N}{N!} e^{-<N>}, \qquad (2.4)$$

$$< N >= np, \; S_N = \sqrt{< N >}. \qquad (2.5)$$

Таким образом, для мессбауэровского спектра стандартное отклонение (статистических ошибок) интенсивности счета $N(\upsilon)$ в каждой точке спектра равно

$$S_{N(\upsilon)} = \sqrt{< N(\upsilon) >} \cong \sqrt{N(\upsilon)}\,. \qquad (2.6)$$

Заметим, что при увеличении времени t стандартное отклонение $S_{N(\upsilon)}$ и число зарегистрированных импульсов $N(\upsilon)$ также возрастают, однако их отношение уменьшается:

$$\frac{S_{N(\upsilon)}}{N(\upsilon)} = \frac{\sqrt{N(\upsilon)}}{N(\upsilon)} = \frac{1}{\sqrt{N(\upsilon)}} \sim \frac{1}{\sqrt{t}}\,. \qquad (2.7)$$

§3. Огибающая мессбауэровского спектра

Назовем **огибающей мессбауэровского спектра** зависимость математического ожидания (среднего значения) регистрируемой интенсивности счета импульсов от доплеровской скорости υ движения источника относительно поглотителя – $<N(\upsilon)>$. Далее примем обозначение $N \equiv <N(\upsilon)>$ и получим формулу для огибающей спектра в случае геометрии пропускания, когда интенсивность счета импульсов равна интенсивности γ-излучения, прошедшего через образец-поглотитель.

Запишем интенсивность γ-излучения (плотность потока γ-квантов – число γ-квантов, пролетающих в единицу времени через плоскую поверхность единичной площади, ориентированной перпендикулярно направлению пролета квантов) $N(E,x)$ с энергией E внутри поглотителя в точке с координатой x (рис. 2.7) в виде суммы:

$$N(E,x) = N_{\mathrm{m,r}}(E,x) + N_{\mathrm{m,nr}}(E,x) + N_{\mathrm{nm}}(E,x). \qquad (2.8)$$

Здесь $N_{\mathrm{m,r}}(E,x)$ – плотность потока γ-квантов с энергией E в области мессбауэровского перехода с энергией E_0, испущенных без отдачи ("мессбауэровских резонансных" γ-квантов), $N_{\mathrm{m,nr}}(E,x)$ – плотность потока γ-квантов с энергией E, отвечающих мессбауэровскому ядерному переходу, но испущенных с отдачей ("мессбауэровских нерезонансных" γ-квантов), $N_{\mathrm{nm}}(E,x)$ – плотность потока γ-квантов с энергией E не мессбауэровского перехода ("не мессбауэровских" γ-квантов).

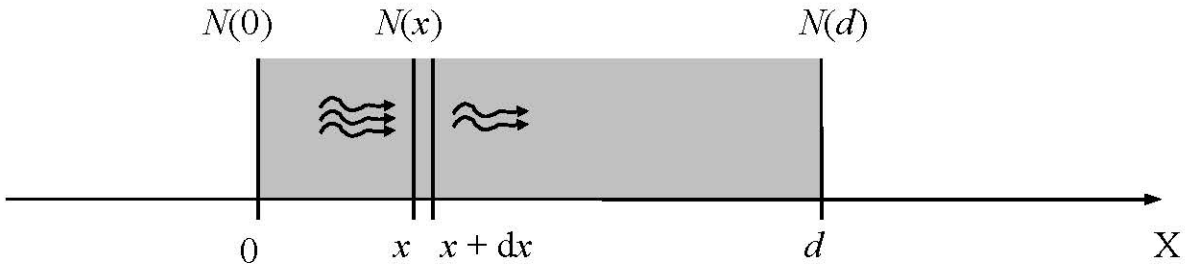

Рис. 2.7. Схематическое изображение процесса поглощения γ-квантов ядрами в твердом теле с глубиной

Тогда, в соответствии с определениями сечения резонансного поглощения $\sigma_{\mathrm{a}}(E)$ (см. §2 в Главе I) "мессбауэровских резонансных" γ-

квантов, вероятности эффекта Мессбауэра f_a для ядер в поглотителе и (линейного) коэффициента нерезонансного поглощения μ_m "мессбауэровских" γ-квантов в поглотителе, для изменения плотности потока при прохождении слоя dx поглотителя можно записать:

$$\mathrm{d}N_{\mathrm{m,r}}(E,x) \equiv N_{\mathrm{m,r}}(E,x+\mathrm{d}x) - N_{\mathrm{m,r}}(E,x) =$$
$$= -N_{\mathrm{m,r}}(E,x)\sigma_{\mathrm{a}}(E)f_{\mathrm{a}}n(x)\mathrm{d}x - N_{\mathrm{m,r}}(E,x)\mu_{\mathrm{m}}\mathrm{d}x,$$

$$\mathrm{d}N_{\mathrm{m,r}}(E,x)/N_{\mathrm{m,r}}(E,x) = -\left(\sigma_{\mathrm{a}}(E)f_{\mathrm{a}}n(x) + \mu_{\mathrm{m}}\right)\mathrm{d}x,$$

$$\ln\left(N_{\mathrm{m,r}}(E,x)\right) = -\sigma_{\mathrm{a}}(E)f_{\mathrm{a}}\int_0^x n(x)\mathrm{d}x - \mu_{\mathrm{m}}x + const,$$

$$N_{\mathrm{m,r}}(E,x) = N_{\mathrm{m,r}}(E,0)e^{-\sigma_{\mathrm{a}}(E)n_{\mathrm{a}}(x)f_{\mathrm{a}}}e^{-\mu_{\mathrm{m}}x}, \qquad (2.9)$$

где $N_{\mathrm{m,r}}(E,0)$ – плотность потока "мессбауэровских резонансных" γ-квантов в точке с координатой $x = 0$ (у поверхности поглотителя), $n(x)$ и $n_{\mathrm{a}}(x) \equiv \int_0^x n(x)\mathrm{d}x$ – объемная и поверхностная плотности резонансных ядер в поглотителе соответственно.

Для плотности потока $N_{\mathrm{m,nr}}(E,x)$ "мессбауэровских нерезонансных" γ-квантов, которые нерезонансно поглощаются внутри образца, в точке с координатой x получим:

$$\mathrm{d}N_{\mathrm{m,nr}}(E,x) = -N_{\mathrm{m,nr}}(E,x)\mu_{\mathrm{m}}\mathrm{d}x,$$

$$N_{\mathrm{m,nr}}(E,x) = N_{\mathrm{m,nr}}(E,0)e^{-\mu_{\mathrm{m}}x}, \qquad (2.10)$$

где $N_{\mathrm{m,rr}}(E,0)$ – плотность потока "мессбауэровских нерезонансных" γ-квантов у поверхности поглотителя.

Аналогично для плотности потока $N_{\mathrm{nm}}(E,x)$ "не мессбауэровских" γ-квантов будем иметь:

$$\mathrm{d}N_{\mathrm{nm}}(E,x) = -N_{\mathrm{nm}}(E,x)\mu_{\mathrm{nm}}\mathrm{d}x,$$

$$N_{\mathrm{nm}}(E,x) = N_{\mathrm{nm}}(E,0)e^{-\mu_{\mathrm{nm}}x}, \qquad (2.11)$$

где $N_{\mathrm{nm}}(E,0)$ – плотность потока "не мессбауэровских" γ-квантов у поверхности поглотителя, μ_{nm} – (линейный) коэффициент нерезонансного поглощения "не мессбауэровских" γ-квантов.

Запишем плотность потока $N_{\mathrm{m,r}}(E,0)$ "мессбауэровских резонансных" γ-квантов у поверхности образца в точке с координатой $x = 0$ с учетом формы линии испускания $W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon)$ и ее положения на шкале доплеровских скоростей при движении источника относительно поглотителя со скоростью υ (см. §2 и §4 в Главе I):

$$N_{\mathrm{m,r}}(E,0) = N_{\mathrm{m}}(0)f_{\mathrm{s}}W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon), \qquad (2.12)$$

$$W_s(E,\upsilon)=\frac{2}{\pi\Gamma_s}\cdot\frac{1}{1+\left(\dfrac{E-E_0-E_0\upsilon/c}{\Gamma_s/2}\right)^2},\ \int_0^\infty W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E=1. \qquad (2.13)$$

Здесь $N_m(0)$ – плотность потока всех "мессбауэровских" γ-квантов, испускаемых источником и падающих на образец, f_s – вероятность безотдачного испускания γ-квантов в источнике, Γ_s – ширина линии излучения источника; при этом использовано приближение лоренцевской формы линии испускания, что справедливо при слабой неоднородности окружения мессбауэровских атомов и малом эффекте самопоглощения в источнике (см. §5 и 6).

Теперь с учетом (2.10)–(2.12), для плотности потока регистрируемых γ-квантов $N(E,d)$ с энергией E после образца-поглотителя толщиной d ($n_a(d)\equiv n_a$) при движении источника относительно поглотителя со скоростью υ будем иметь:

$$N(E,d)=N_{m,r}(E,d)+N_{m,nr}(E,d)+N_{nm}(E,d)=$$
$$=N_m(0)f_sW_s(E,\upsilon)e^{-\sigma_a(E)n_af_a}e^{-\mu_md}+$$
$$+N_{m,nr}(E,0)e^{-\mu_md}+N_{nm}(E,0)e^{-\mu_{nm}d}. \qquad (2.14)$$

Плотность потока всех регистрируемых γ-квантов $N(d,\upsilon)$ после прохождения поглотителя получим интегрированием (2.14) по энергии E:

$$N(d,\upsilon)=\int_0^\infty N(E,d)\mathrm{d}E=N_m(0)\ell^{-\mu_md}f_s\int_0^\infty e^{-\sigma_a(E)n_af_a}W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E+$$
$$+N_{m,nr}(0)e^{-\mu_md}+N_{nm}(0)e^{-\mu_{nm}d}. \qquad (2.15)$$

Здесь $N_{m,nr}(0)=N_m(0)(1-f_s)$ и $N_{nm}(0)$ – плотности потоков "мессбауэровских нерезонансных" и "не мессбауэровских" γ-квантов в падающем на образец потоке соответственно. С учетом нормировки линии испускания источника $W_s(E,\upsilon)$ (2.13) преобразуем последнее выражение к виду:

$$N(d,\upsilon)=$$
$$=N_m(0)\ell^{-\mu_md}f_s\int_0^\infty e^{-\sigma_a(E)n_af_a}W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E+(1-f_s)N_m(0)e^{-\mu_md}+N_{nm}(d)=$$
$$=N_{nm}(d)+N_m(0)e^{-\mu_md}-N_m(0)e^{-\mu_md}f_s\int_0^\infty\left(1-e^{-\sigma_a(E)n_af_a}\right)W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.16)$$

Введем в рассмотрение **плотность потока (интенсивность счета импульсов) всех γ-квантов** N_∞ **после поглотителя** при больших доплеровских скоростях движения источника относительно поглотителя, т.е. **в отсутствие резонанса**:

$$N_\infty\equiv N_{nm}(d)+N_m(0)e^{-\mu_md}, \qquad (2.17)$$

а также **долю χ "мессбауэровских" γ-квантов в потоке после поглотителя в отсутствие резонанса**:

$$\chi = \frac{N_{\mathrm{m}}(0)e^{-\mu_{\mathrm{m}}d}}{N_{\infty}}. \tag{2.18}$$

В результате плотность потока всех регистрируемых γ-квантов после прохождения поглотителя (огибающей спектра) будет иметь вид:

$$N(\upsilon) \equiv N(d,\upsilon) = N_{\infty} - N_{\infty}\chi f_{\mathrm{s}}\int_0^{\infty}\left(1 - e^{-f_{\mathrm{a}}n_{\mathrm{a}}\sigma_{\mathrm{a}}(E)}\right)W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \tag{2.19}$$

При наличии нескольких неэквивалентных позиций мессбауэровского ядра, отличающихся как вероятностью эффекта f_{a} и поверхностной плотностью n_{a}, так и сечением резонансного поглощения $\sigma_{\mathrm{a}}(E)$, для огибающей спектра получим:

$$N(\upsilon) = N_{\infty} - N_{\infty}\chi f_{\mathrm{s}}\int_0^{\infty}\left(1 - e^{-\sum f_{\mathrm{a}}n_{\mathrm{a}}\sigma_{\mathrm{a}}(E)}\right)W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \tag{2.20}$$

В (2.20) суммирование в показателе степени осуществляется по всем неэквивалентным позициям мессбауэровского ядра в поглотителе. При этом сечение резонансного поглощения $\sigma_{\mathrm{a}}(E)$ в приближении лоренцевской формы линии поглощения в соответствии с формулой (1.34) в Главе I будет равно:

$$\sigma_{\mathrm{a}}(E) = \sigma_0\alpha_{\mathrm{a}}(E) = \sigma_0\frac{\pi\Gamma_{\tau}}{2}W_{\mathrm{L}}(E,E_0,\Gamma_{\tau}) \Rightarrow$$

$$\Rightarrow \sigma_0\frac{\pi\Gamma_{\tau}}{2}W_{\mathrm{L}}(E,E_0,\upsilon_k^{\mathrm{a}},\Gamma_{\mathrm{a}}) = \sigma_0\frac{\Gamma_{\tau}}{\Gamma_{\mathrm{a}}}\sum_{k=1}^{p_{\mathrm{a}}}\frac{\beta_k^{\mathrm{a}}}{1+\left(\dfrac{E-E_0-E_0\upsilon_k^{\mathrm{a}}/c}{\Gamma_{\mathrm{a}}/2}\right)^2}, \tag{2.21}$$

где σ_0 – максимальное сечение резонансного поглощения, а функция $\alpha_{\mathrm{a}}(E)$ определяется характером расщепления возбужденного и основного энергетических уровней ядра в поглотителе и в общем случае равна сумме лоренцевских линий; Γ_{τ} – естественная ширина; Γ_{a} – ширина линии поглощения, которая может заметно отличаться от естественной ширины Γ_{τ} из-за неоднородности окружения мессбауэровских ядер в образце; p_{a} – число компонент для парциального спектра, соответствующего неэквивалентной позиции ядра, и выполняется условие $\sum_{k=1}^{p_{\mathrm{a}}}\beta_k^{\mathrm{a}} = 1$. Для каждой неэквивалентной позиции параметры f_{a}, n_{a}, $\alpha_{\mathrm{a}}(\{p_{\mathrm{a}}, \beta_k^{\mathrm{a}}, \upsilon_k^{\mathrm{a}}, \Gamma_{\mathrm{a}}\})$ – свои. Заметим, что отношение ширин, используемое в выражении (2.21) в качестве множителя, получается в результате нормировки функция $\alpha_{\mathrm{a}}(E)$:

$$\int_0^\infty \alpha_a(E)\mathrm{d}E = \frac{\pi\Gamma_\tau}{2}. \qquad (2.22)$$

§4. Величина эффекта и эффективная толщина образца

Введем в рассмотрение физический параметр, характеризующий толщину образца – **эффективную толщину образца** t_a:

$$t_a \equiv f_a n_a \sigma_0. \qquad (2.23)$$

Тогда огибающую спектра можно записать в виде

$$N(\upsilon) = N_\infty - N_\infty \chi f_s \int_0^\infty \left(1 - e^{-\sum t_a \alpha_a(E)}\right) W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.24)$$

В рамках того же рассмотрения **видимая величина эффекта** равна

$$\Delta N(\upsilon) \equiv N_\infty - N(\upsilon) = N_\infty \chi f_s \int_0^\infty \left(1 - e^{-\sum t_a \alpha_a(E)}\right) W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.25)$$

По определению **(относительная) величина эффекта** $\eta(\upsilon)$ – это отношение видимой величины эффекта $\Delta N(\upsilon)$ к интенсивности счета "мессбауэровских" γ-квантов в отсутствие резонанса N_m:

$$\eta(\upsilon) \equiv \frac{\Delta N(\upsilon)}{N_m} = \frac{N_\infty - N(\upsilon)}{\chi N_\infty}. \qquad (2.26)$$

<u>Заметим, что величина эффекта определяется только свойствами источника и исследуемого образца и не зависит от параметров настройки конкретного спектрометра, действительно</u>:

$$\eta(\upsilon) = f_s \int_0^\infty \left(1 - e^{-\sum t_a \alpha_a(E)}\right) W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.27)$$

При эффективной толщине $t_a \ll 1$ образец называется "**тонкий образец**" и в этом случае, как это следует из (2.24), имеем:

$$N(\upsilon) = N_\infty - N_\infty \chi f_s \sum t_a \int_0^\infty \alpha_a(E) W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.28)$$

Как видим, для достаточно тонкого образца справедлив **принцип суперпозиции** – мессбауэровский спектр такого образца можно представить в виде суперпозиции отдельных парциальных спектров (подрешеток) и с учетом (2.21) – их компонент (резонансных линий). При этих же условиях величина эффекта $\eta(\upsilon)$ может быть представлена в виде суммы:

$$\eta(\upsilon) = f_s \sum t_a \int_0^\infty \alpha_a(E) W_s(E,\upsilon)\mathrm{d}E. \qquad (2.29)$$

В случае лоренцевской формы линий излучения $W_s(E)$ и сечения резонансного поглощения $\sigma_a(E)$ легко получить (с учетом того, что свертка двух лоренцевских функций дает функцию Лоренца с шириной на поло-

вине высоты, равной сумме ширин исходных функций; см. п. 2 в Приложении II):

$$N(\upsilon) = N_\infty - N_\infty \chi f_\mathrm{s} \sum t_\mathrm{a} \frac{\Gamma_\tau}{\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a}} \sum_{k=1}^{p_\mathrm{a}} \frac{\beta_k^\mathrm{a}}{1 + \left(\frac{E_0 \upsilon / c - E_0 \upsilon_k^\mathrm{a} / c}{(\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a})/2} \right)^2}, \qquad (2.30)$$

$$\eta(v) = f_\mathrm{s} \sum t_\mathrm{a} \frac{\Gamma_\tau}{\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a}} \sum_{k=1}^{p_\mathrm{a}} \frac{\beta_k^\mathrm{a}}{1 + \left(\frac{E_0 \upsilon / c - E_0 \upsilon_k^\mathrm{a} / c}{(\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a})/2} \right)^2}. \qquad (2.31)$$

Как видим, в этом случае мессбауэровский спектр представляется в виде совокупности лоренцевских линий с ширинами $\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a}$.

Оценка эффективной толщины образца t_a.

Для ядер ^{57}Fe $m_\mathrm{Fe} = 57$ а.е.м. (1 а.е.м.=$1.66 \cdot 10^{-27}$ кг) и $\sigma_0 = 256 \cdot 10^{-24}$м^2. Пусть $n_\mathrm{a} = 0.1$ мг ^{57}Fe/см^2 и $f_\mathrm{a} = 0.6$. В этом случае

$$t_\mathrm{a} = f_\mathrm{a} n_\mathrm{a} \sigma_0 \cong 0.6 \cdot \frac{0.1 \cdot 10^{-6}}{57 \cdot 1.66 \cdot 10^{-27} \cdot 10^{-4}} \cdot 256 \cdot 10^{-24} \cong 1.6 .$$

Если учесть при этом, что $\beta_k^\mathrm{a} \le 1$ (для секстета – 1/4 : 1/6 : 1/12), то можно считать, что для многокомпонентных спектров при $n_\mathrm{a} < 0.1$ мг^{57}Fe/см^2 выполняется условие достаточно "тонкого образца".

Обратим внимание на то, что наличие толщины образца t_a в показателе экспоненты в формулах (2.24), (2.25) и (2.27) приводит к влиянию толщины исследуемого образца на форму его мессбауэровского спектра. При этом будут меняться такие параметры спектра, как интенсивность, амплитуда, ширина и положение его компонент (резонансных линий). Это влияние называется **эффектом насыщения**.

Можно показать [23–25], что с достаточной степенью точности экспериментально определяемая ширина компоненты спектра зависит от толщины образца следующим образом (см. рис. 2.8):

при $t_\mathrm{a} \le 4$ $\quad - \Gamma_\mathrm{exp} \cong (\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a}) \cdot (1 + 0.135 \cdot t_\mathrm{a}),$ (2.32)

при $4 \le t_\mathrm{a} \le 10$ – $\Gamma_\mathrm{exp} \cong (\Gamma_\mathrm{s} + \Gamma_\mathrm{a}) \cdot (1 + 0.145 \cdot t_\mathrm{a} - 0.0025 \cdot t_\mathrm{a}^2).$ (2.33)

При этом интенсивность (площадь) и амплитуда компонент спектра будут меняться нелинейно. (Подробнее о влиянии эффекта насыщения на величину эффекта и площадь спектра см. §6 в Главе III).

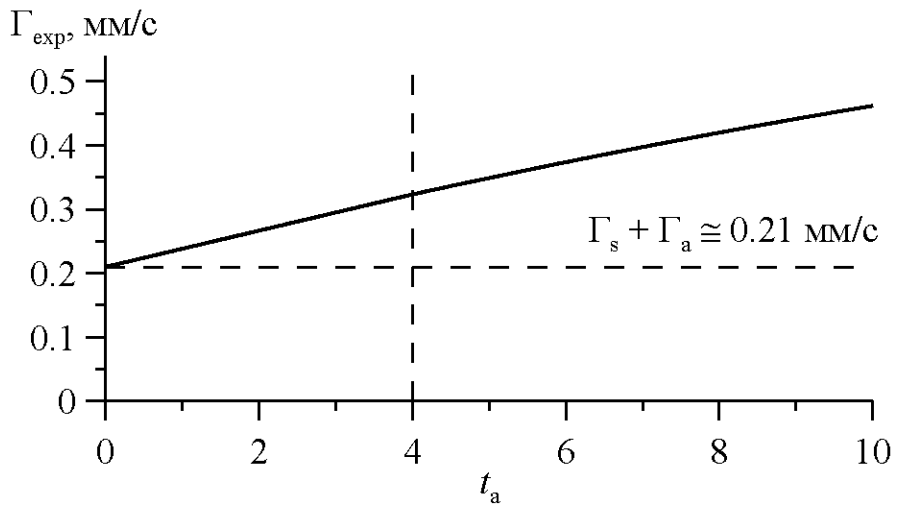

Рис. 2.8. Зависимость экспериментальной ширины резонансной линии от эффективной толщины образца (при $\Gamma_s + \Gamma_a \cong \Gamma_s + \Gamma_\tau \cong 0.21$ мм/с для ядер ^{57}Fe)

§5. Форма линии излучения, линии поглощения и резонансной линии

Обычно принимается, что линия излучения источника $W_s(E)$ имеет лоренцевскую форму с естественной шириной Γ_τ, обусловленную собственно явлением спонтанного испускания γ-квантов (см. §2 в Главе I):

$$W_L(E,\Gamma_\tau) = \frac{2}{\pi\Gamma_\tau}\cdot\frac{1}{1+\left(\dfrac{E-E_0}{\Gamma_\tau/2}\right)^2}. \qquad (2.34)$$

Однако, как правило, форма линии источника отличается от лоренцевской, а ее ширина от естественной ширины линии излучения.

Основными причинами изменения формы и уширения линии источника являются:

1) локальная неоднородность ядер в матрице источника,
2) при большой начальной активности источника – эффект самопоглощения (см. §6).

Если рассматривать форму и ширину компоненты (резонансной линии) спектра в экспериментальном спектре (см. (2.20)), то необходимо еще добавить:

1) локальную неоднородность ядер в образце,
2) эффект насыщения (§7 в Главе III),
3) геометрический эффект (§7),
4) качество работы вибратора спектрометра (нелинейность по скорости, паразитные вибрации и т.д.),

5) в ряде случаев способ регистрации γ-квантов (например, при резонансном детектировании заметно меняется форма резонансной линии при одновременном уменьшении ее ширины).

5.1. Форма линии Фойгта

При сильной неоднородности в окружении мессбауэровских ядер в источнике положение линии излучения лоренцевского профиля для одного ядра является случайной величиной. Известно, что случайная величина, являющаяся результатом одновременного влияния большого числа случайных факторов, каждый из которых по своему воздействию не превышает заметным образом остальные, имеет нормальное (гауссовское) распределение (см., п. 3 в Приложении II и, например, [26]):

$$W_{\mathrm{G}}(x,\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}})=\frac{2}{\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}}}\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}e^{-\left(\frac{x}{\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}}/2}\right)^{2}\ln 2}, \qquad (2.35)$$

где $\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}}$ – ширина на половине высоты.

Линия Гаусса представляет собой функцию плотности вероятности (нормальное или гауссовское распределение) сдвига линии испускания мессбауэровского ядра из-за одновременного влияния большого числа случайных факторов. Согласно физическому смыслу этой функции выполняется условие нормировки:

$$\int_{-\infty}^{\infty}W_{\mathrm{G}}(x,\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}})\mathrm{d}x=1.$$

Поэтому с учетом неоднородности окружения мессбауэровких ядер можно описать форму линии излучения источника с помощью функции Фойгта $W_{\mathrm{V}}(E,\Gamma_{\mathrm{s}})$ [27], задаваемой в виде интеграла свертки:

$$W_{\mathrm{V}}(E,\upsilon,\Gamma_{\mathrm{s}})=\int_{-\infty}^{\infty}W_{L}(E-x,\upsilon,\Gamma_{\tau})W_{\mathrm{G}}(x,\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}})\mathrm{d}x. \qquad (2.36)$$

Сечение резонансного поглощения ядра $\sigma_{\mathrm{a}}(E)$ также имеет лоренцевскую форму или является суперпозицией функций Лоренца с естественной шириной линии Γ_{τ} (2.21). Неоднородность окружения поглощающих мессбауэровских ядер в исследуемом веществе приводит к тому, что положение лоренцевской линии поглощения ядра случайным образом распределено относительно некоторого среднего его значения и имеет нормальное распределение. Линия поглощения всех ядер в тонком поглотителе так же, как и в случае линии излучения источника (2.36), представляется в виде линии (или совокупности линий) Фойгта, но в общем случае со своей шириной $\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{a}}$:

$$W_{\mathrm{V}}(E,\upsilon_k^{\mathrm{a}},\Gamma_{\mathrm{a}})=\int_{-\infty}^{\infty}W_{\mathrm{L}}(E-x,\upsilon_k^{\mathrm{a}},\Gamma_\tau)W_{\mathrm{G}}(x,\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{a}})\mathrm{d}x\,.$$

При этом сечение резонансного поглощения будет равно

$$\sigma_{\mathrm{a}}(E)=\sigma_0\alpha_{\mathrm{a}}(E)=\sigma_0\frac{\pi\Gamma_\tau}{2}\sum_{k=1}^{p_a}\beta_k^a W_{\mathrm{V}}(E,\upsilon_{\mathrm{k}}^{\mathrm{a}},\Gamma_{\mathrm{a}})\,. \qquad (2.37)$$

В приближении "тонкого образца", т.е. при эффективной толщине поглотителя $t_{\mathrm{a}} \equiv n_{\mathrm{a}}f_{\mathrm{a}}\sigma_0 << 1$ (см. §3), огибающая мессбауэровского спектра принимает вид (2.28). Каждая из функций под знаком интеграла в (2.28), описывающая линию испускания – $W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon)=\mathrm{W}_{\mathrm{V}}(E,\upsilon,\Gamma_{\mathrm{s}})$ или резонансную линию поглощения – $W_{\mathrm{V}}(E,\upsilon_k^{\mathrm{a}},\Gamma_{\mathrm{a}})$, имеет форму линии Фойгта. Свертка двух функций Фойгта тоже есть функция Фойгта с гауссовской и лоренцевской компонентами [28] (см. п. 2 в Приложении II), следовательно, в результате с учетом (2.37) получим

$$N(\upsilon)=N_\infty-N_\infty\chi f_{\mathrm{s}}\sum t_{\mathrm{a}}\int_0^\infty\alpha_{\mathrm{a}}(E)W_{\mathrm{s}}(E,\upsilon)\mathrm{d}E=$$

$$=N_\infty-N_\infty\chi f_{\mathrm{s}}\frac{\pi\Gamma_\tau}{2}\sum t_{\mathrm{a}}\sum_{k=1}^{p_{\mathrm{a}}}\beta_k^{\mathrm{a}}W_{\mathrm{V}}(\upsilon-\upsilon_k^{\mathrm{a}},\Gamma_{\mathrm{exp}})\,. \qquad (2.38)$$

Другими словами, огибающая мессбауэровского спектра в случае достаточно тонкого образца при учете локальной неоднородности в источнике и поглотителе описывается в виде суперпозиции резонансных линий (компонент спектра), форма которых описывается функцией Фойгта. При этом гауссовская компонента этой функции имеет ширину линии Γ_{G}, которая определяется ширинами нормального распределения сдвигов линии испускания ядра в источнике и линии поглощения ядра в поглотителе:

$$\Gamma_{\mathrm{G}}=\sqrt{\left(\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{s}}\right)^2+\left(\Gamma_{\mathrm{G}}^{\mathrm{a}}\right)^2}\,, \qquad (2.39)$$

а лоренцевская компонента имеет ширину Γ_{L}, равную сумме естественных ширин линий испускания и поглощения мессбауэровского ядра:

$$\Gamma_{\mathrm{L}}=2\Gamma_\tau\,. \qquad (2.40)$$

Наиболее близкой к реальной форме резонансной линии в спектре является функция Фойгта. Однако эта форма линии оказывается неудобной для применения из-за необходимости взятия интеграла в каждой точке вычисления огибающей. Поэтому функция Фойгта практически не применяется при анализе экспериментальных спектров. В качестве приближения к этой функции используют обычно две другие – модифицированную функцию Лоренца W_{ML} [11, 28] и псевдо-функцию Фойгта W_{PV} [11, 29]:

$$W_{\mathrm{ML}}(E,\Gamma)\sim\frac{1}{1+\left(\frac{E\text{-}E_0}{\Gamma/2}\right)^2+\alpha\left(\frac{E\text{-}E_0}{\Gamma/2}\right)^3+\beta\left(\frac{E\text{-}E_0}{\Gamma/2}\right)^4}\,, \qquad (2.41)$$

$$W_{\mathrm{PV}}(E,\Gamma)=(1-\alpha)W_{\mathrm{L}}(E,\Gamma_{\mathrm{L}})+\alpha W_{\mathrm{G}}(E,\Gamma_{\mathrm{G}})\,. \qquad (2.42)$$

Здесь α и β наряду с ширинами линий являются варьируемыми параметрами. Обычно в (2.42) при обработке экспериментальных спектров принимается $\Gamma = \Gamma_{\mathrm{L}} = \Gamma_{\mathrm{G}}$.

Для описания асимметричных резонансных линий, которые могут возникнуть при регистрации с помощью резонансного детектора, используется обычно модифицированная функция Лоренца (2.41). В то же время лучшим приближением в случае симметричной формы реальной резонансной линии является псевдо-функция Фойгта (2.42).

5.2. Анализ применения различных профилей резонансной линии

Проведем анализ корректности выбора профиля отдельной компоненты мессбауэровского спектра при его обработке. Для этого сначала в согласии с (2.28) смоделируем мессбауэровские спектры в виде одиночной резонансной линии (в отсутствие сверхтонкого электрического квадрупольного и магнитного дипольного взаимодействий) в широком диапазоне качества Q (см. подробнее об этом §8) с учетом степени неоднородности окружения мессбауэровских ядер в источнике и поглотителе. Затем с помощью модельной расшифровки спектра (например, используя программу SPECTR или SpectrRelax; см. §4 в Главе V) исследуем область применимости различных форм резонансной линии – функции Лоренца L (2.34), симметричной (при $\alpha = 0$) модифицированной функции Лоренца ML (2.41), PV (2.42) и функции Гаусса G (2.35). При этом расшифровку проведем в приближении "тонкого образца" (§3) и идеально работающего спектрометра.

Компьютерное моделирование мессбауэровских спектров проводилось в широких диапазонах значений качества спектра $Q = 10\div400$ и ширины $\Gamma_{\mathrm{G}} = 0.05\div0.15$ мм/с, задающей степень неоднородности окружения мессбауэровских ядер в источнике и поглотителе. При этом $\Gamma_{\mathrm{L}} = 0.194$ мм/с (случай ядер ^{57}Fe). Для каждого модельного спектра с различными ширинами гауссовской компоненты Γ_{G} при фиксированной ширине лоренцевской компоненты $\Gamma_{\mathrm{L}} = 2\Gamma_{\tau} = 0.194$ мм/с были найдены ширины спектра Γ. Величина Γ определялась как ширина огибающей спектра на половине ее высоты.

На рис. 2.9 показана зависимость ширины Γ от Γ_{G} во всем выбранном нами интервале изменения ширины гауссовской компоненты. Обратим внимание на то, что ширина Γ возрастает с увеличением Γ_{G} сначала слабо, а затем асимптотически стремится к значению $\Gamma_{\tau} + \Gamma_{\mathrm{G}}$.

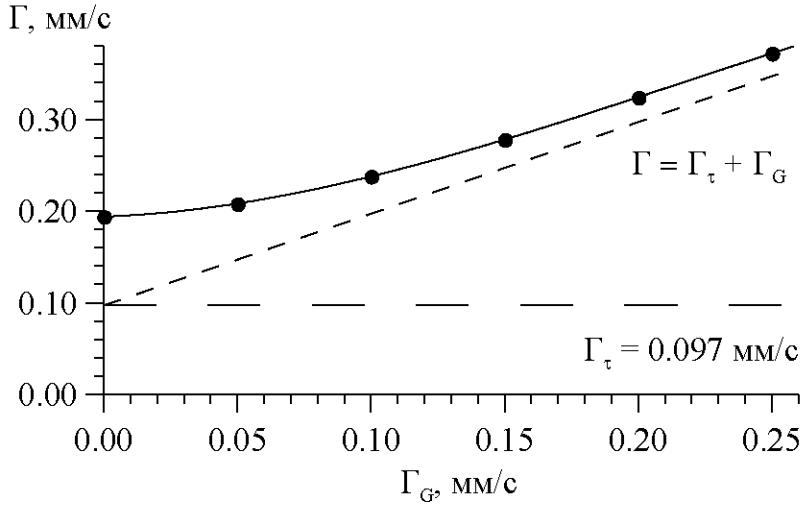

Рис. 2.9. Зависимость ширины модельного спектра *Г* от ширины гауссовской компоненты *Г*G (для ядер ^{57}Fe)

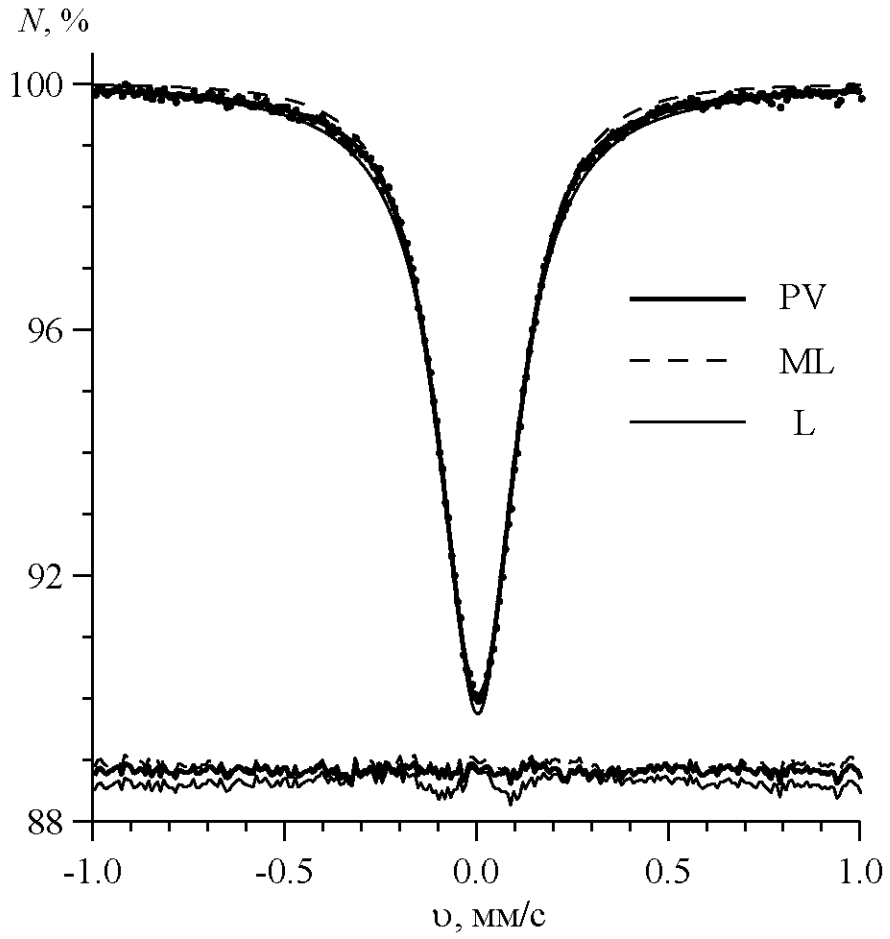

Рис. 2.10. Результаты обработки модельного мессбауэровского спектра ядер ^{57}Fe с качеством Q = 150 и шириной *Г*G = 0.10 мм/с при использовании различных форм резонансной линии

Качественный сравнительный анализ результатов обработки, полученных с помощью программы SPECTR, показывает (см. рис. 2.10), что на фоне случайных отклонений, которые обуславливаются статистическим шумом, систематические отклонения огибающей линии от модельного спектра хорошо прослеживаются у функции Лоренца, заметно уменьшаются у модифицированной функции Лоренца и практически не проявляют себя при описании спектра псевдо-функцией Фойгта.

С увеличением качества спектра Q наблюдается тенденция в последовательном все большем проявлении систематических ошибок при описании модельных спектров с помощью одной и той же формы линии. При этом систематические отклонения огибающей от модельных спектров возрастают с использованием различных форм линий в ряду: PV, ML, L и G.

При низких качествах спектра (Q = 10÷50) параметры α и β имеют большие ошибки, сравнимые с самими величинами α и β. Так как при $\alpha, \beta \to 0$ псевдо-функция Фойгта и модифицированная функция Лоренца преобразуются в функцию Лоренца, то становится очевидным, что резонансная линия для мессбауэровского спектра с такими значениями Q при обработке может иметь лоренцевский профиль.

На рис. 2.11 представлены найденные при обработке значения параметров формы линии α и β соответственно для псевдо-функции Фойгта и модифицированной функции Лоренца, которая использовалась в симметричном варианте – $\alpha = 0$ (2.25).

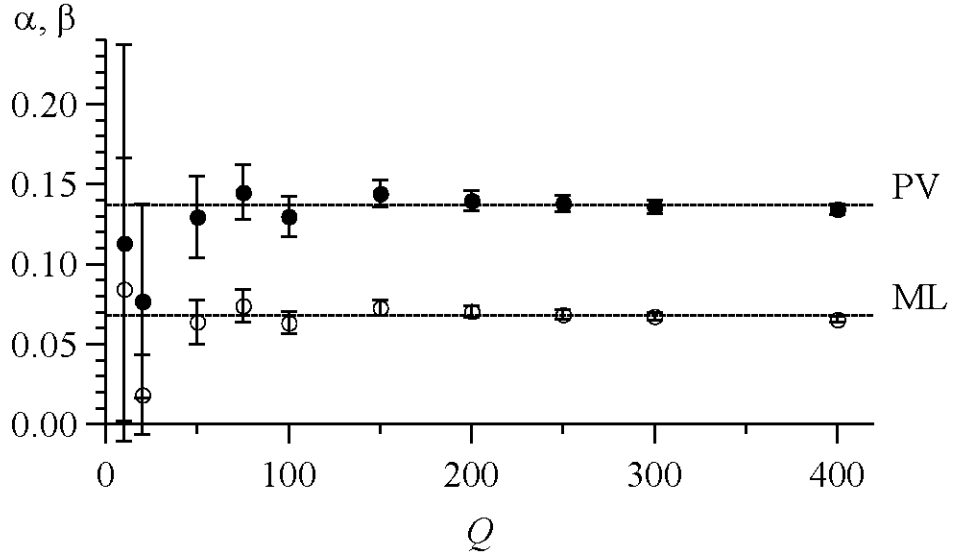

Рис. 2.11. Параметры формы резонансных линий α и β для псевдо-функции Фойгта (α) и симметричной модифицированной функции Лоренца (β) соответственно, в зависимости от качества спектра Q; случай Γ_G = 0.10 мм/с

Характерно, что для всех ширин Γ_G при больших качествах (Q > 100, когда стандартное отклонение статистических ошибок параметров значительно меньше их величин) параметры стремятся к некоторым постоян-

ным значениям (на рисунках они обозначены горизонтальными штриховыми линиями). Зависимость этих "аппроксимированных" значений α и β от ширины модельного спектра Г представлена на рис. 2.12.

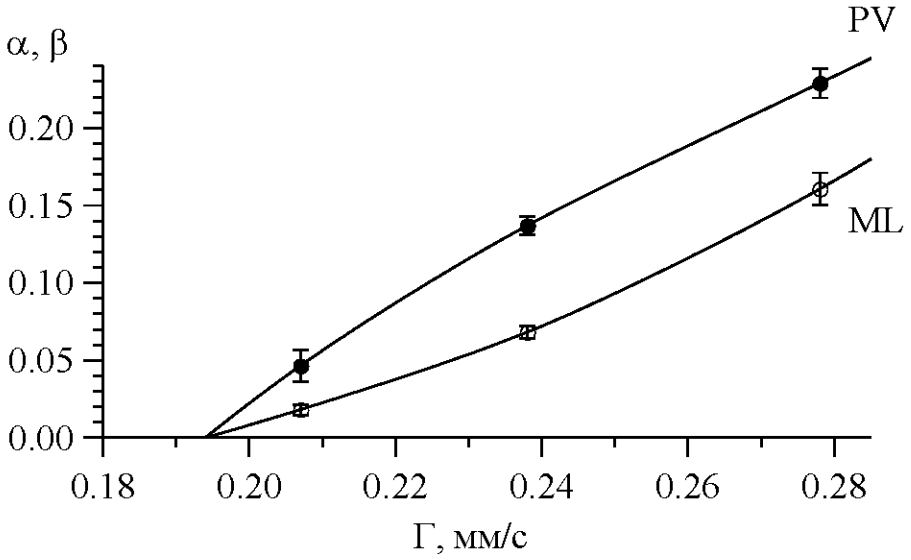

Рис. 2.12. Зависимость от ширины линии Γ параметров формы резонансной линии α и β для псевдо-функции Фойгта и модифицированной функции Лоренца соответственно

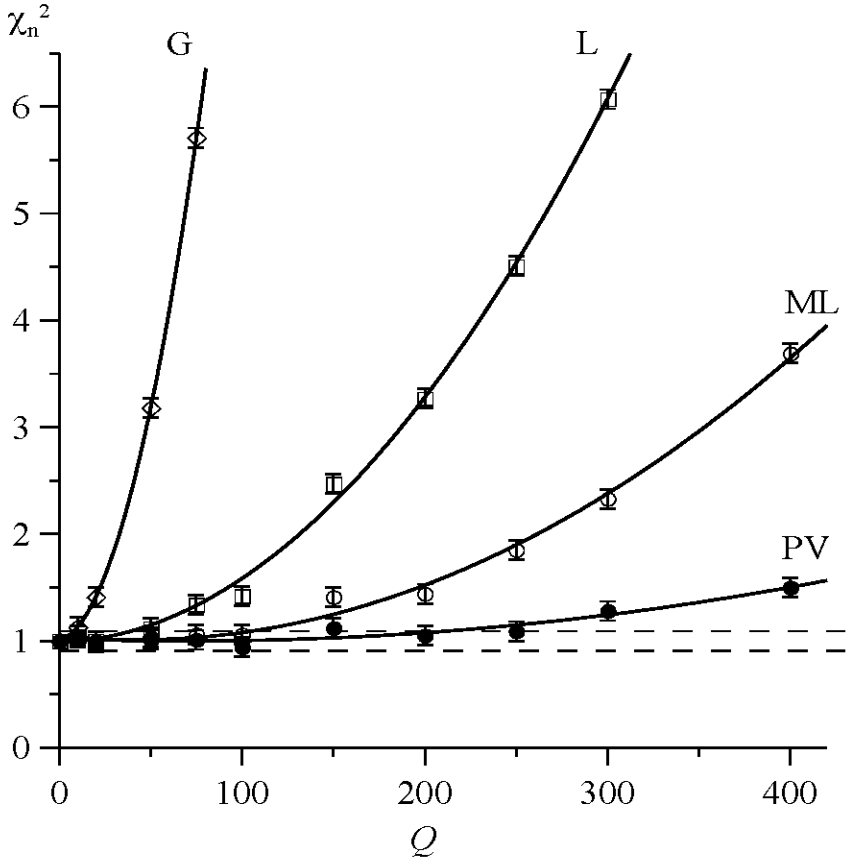

Рис. 2.13. Зависимость нормированного значения "хи-квадрат" χ^2_{n} от качества обрабатываемого спектра Q; случай Γ_{G} = 0.10мм/с

На рис. 2.13 приведены зависимости нормированного значения функционала "хи-квадрат" χ^2_{n} от качества спектра Q для случаев обработки с помощью всех четырех профилей при значении ширины резонансной линии модельного спектра $\Gamma = 0.238$ мм/с, которое соответствует ширине гауссовской компоненты $\Gamma_{\text{G}} = 0.10$ мм/с.

Напомним, что $\chi^2_{\text{n}} \equiv \chi^2 / r$, где $\chi^2 = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{N_i - N(\upsilon_i)}{S_{N_i}} \right)^2$ – функционал хи-квадрат, $r = n - m$ – число степеней свободы, n – число экспериментальных точек в спектре, m – число варьируемых параметров.

Штриховыми линиями на рисунке показан доверительный интервал для случайной величины χ^2_n с границами $\chi^2_n = 1 \pm S_{\chi^2_{\text{n}}}$. Причем $S_{\chi^2_{\text{n}}} = \frac{S_{\chi^2}}{n-m} = \frac{\sqrt{2(n-m)}}{n-m} = \sqrt{\frac{2}{n-m}}$. Если значения χ^2_n попадают в этот интервал, т.е. отклонения модельного спектра от предполагаемой формы резонансной линии не выходят за рамки статистических отклонений, то описание данного спектра резонансной линией выбранной формы считается удовлетворительным. Если же значения χ^2_n выпадают из данного интервала, то это является признаком появления систематических отклонений, причем, чем дальше точка χ^2_n от границ доверительного интервала, тем хуже соответствующая форма резонансной линии описывает мессбауэровский спектр.

Необходимо заметить, что все зависимости $\chi^2_{\text{n}}(Q)$ выстроились таким образом, что самая "резкая" кривая – это результаты обработок с помощью функции Гаусса (G), а наиболее пологая линия – с помощью псевдо-функции Фойгта (PV). Полученные результаты наглядно подтверждают вывод о том, какая форма резонансной линии лучше описывает мессбауэровский спектр.

Пересечение зависимостей $\chi^2_{\text{n}}(Q)$ с граничными значениями доверительного интервала при данной ширине модельного спектра Γ (а значит и ширине гауссовой компоненты Γ_{G}) определяет ту величину Q, при которой еще можно считать удовлетворительным описание спектра выбранной формой резонансной линии. Зависимость таких предельных значений Q от ширины Γ представлена на рис. 2.14.

При построении границ области применимости различных форм резонансной линии на плоскости качество Q – ширина Γ учитывались два предельных значения качества при $\Gamma = \Gamma_{\text{L}} = 2\Gamma_\tau = 0.194$ мм/с: для гауссовой границы $Q = 0$ и для границ остальных форм – $Q \to \infty$.

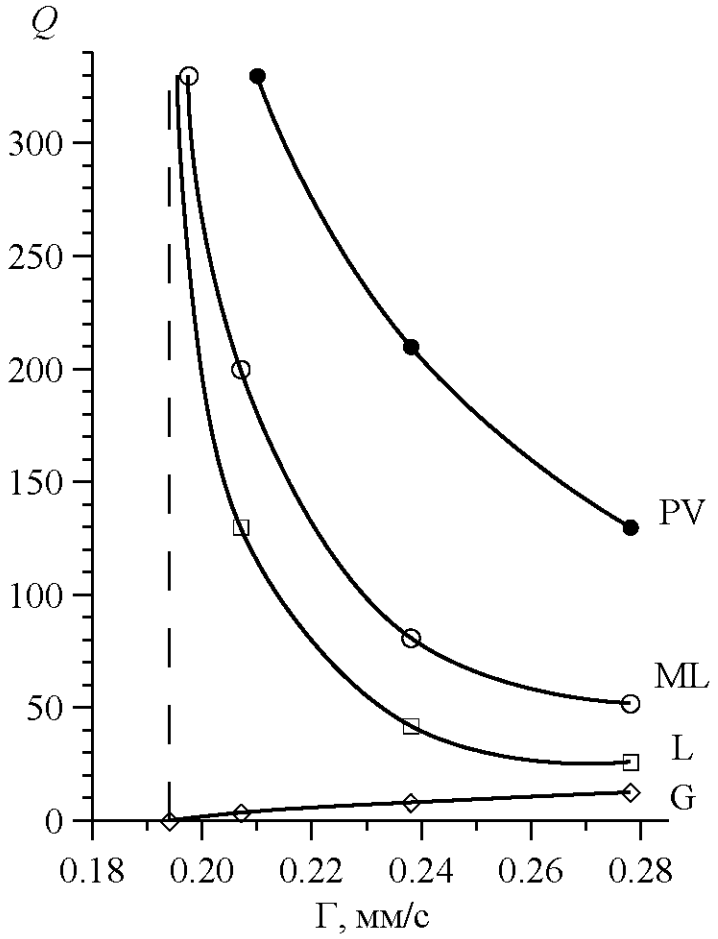

Рис. 2.14. Границы области применимости различных форм резонансной линии при обработке мессбауэровских спектров для изотопа ^{57}Fe

Область, ограниченная с одной стороны линией границы для каждой из форм, а с другой осью ширин Γ, и есть область применимости данной формы резонансной линии. Самой большой областью обладает функция псефдо-Фойгт, далее, в порядке убывания размера области: модифицированная функция Лоренца, функция Лоренца и функция Гаусса. Заметим, в частности, что широко используемая функция Лоренца в случае ширины резонансной линии $\Gamma \sim 0.24$ мм/с при качестве спектра $Q > \sim 50$ не может быть использована.

§6. Самопоглощение в источнике

Сначала выясним вопрос о взаимосвязи интенсивности излучения источника с числом материнских ядер в нем. В соответствии с экспоненциальным характером распада (см. §1 в Главе I) объемная плотность материнских ядер $m(t)$ в момент времени t равна:

$$m(t) = m(0)e^{-\frac{t}{T}}, \qquad (2.43)$$

где T – среднее время жизни материнского ядра (напомним, что период полураспада равен $T_{1/2} = \ln 2 \cdot T$; см. §1 в Главе I).

В соответствии с определением активность источника $N(t)$ (число актов распада материнских ядер в источнике в единицу времени) в случае равномерного распределения ядер по глубине равна

$$N(t) = -S_s x_0 \frac{dm}{dt} = S_s x_0 \frac{m(0)}{T} e^{-\frac{t}{T}} = \frac{S_s x_0}{T} m(t). \qquad (2.44)$$

Здесь S_s – площадь активной поверхности источника, x_0 – максимальная глубина внедрения материнских ядер.

Оценим величины $m(0)$ и x_0 для ядер ^{57}Co. Пусть $T = 270/\ln 2$ дн.; $N(0) = 100$ мКи (1 Ки $\cong 3.7 \cdot 10^{10}$ расп./с), $S_s = \pi d_s^2/4$, где $d_s = 4$ мм – диаметр источника. Тогда в связи с тем, что материнские ядра должны быть примесными

$$m(0) \le 10^{-3} m_м,$$

где $m_м$ – объемная плотность атомов матрицы источника. Если расстояние между этими атомами $r \cong 2.5$ Å (для матрицы Cr), то

$$m(0) \le 10^{-3} m_м \cong 10^{-3} \frac{1}{r^3} \cong \frac{10^{-3}}{2.5^3 \cdot 10^{-30}} \cong 6.4 \cdot 10^{25} м^{-3},$$

$$x_0 \ge \frac{N(0)T}{m(0)S_s} \cong \frac{100 \cdot 10^{-3} \cdot 3.7 \cdot 10^{10} \cdot 270 \cdot 24 \cdot 60 \cdot 60 \cdot 4}{\ln 2 \cdot 6.4 \cdot 10^{25} \cdot 3.14 \cdot 16 \cdot 10^{-6}} \cong 160 \text{ мкм}.$$

Для выяснения вопроса о форме линии источника рассмотрим только "мессбауэровские" "резонансные" γ-кванты (рис. 2.15).

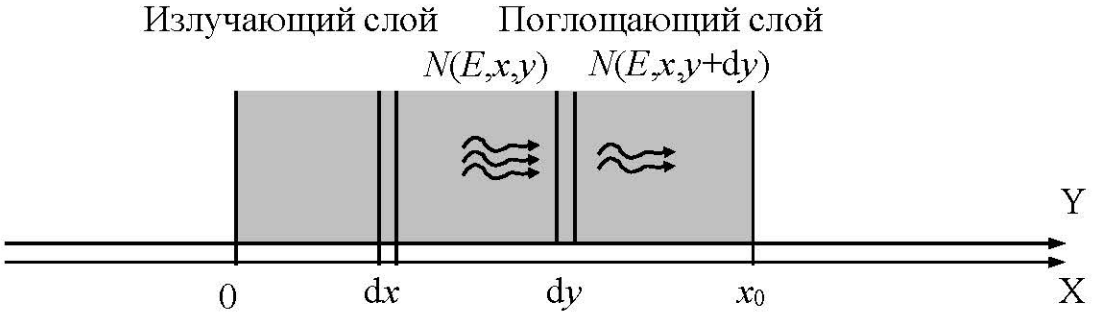

Рис. 2.15. Схематическое изображение процесса самопоглощения γ-квантов в источнике

Пусть $m(x,t)$ – объемная плотность материнских ядер, $n(x,t)$ – объемная плотность дочерних мессбауэровских ядер, $N(E,x,y,t)$ – плотность потока "мессбауэровских резонансных" γ-квантов с энергией E в точке с координатой y, испускаемых ядрами с координатой x (точнее – линейная плотность плотности потока по оси X) в момент времени t, тогда

$$\mathrm{d}N(E,x,y,t) \equiv N(E,x,y+\mathrm{d}y,t) - N(E,x,y,t) =$$
$$= -\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} N(E,x,y,t) n(y,t)\mathrm{d}y - \mu N(E,x,y,t)\mathrm{d}y,$$
$$\mathrm{d}N(E,x,y,t)/N(E,x,y,t) = -(\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(y,t) + \mu)\mathrm{d}y,$$
$$\ln(N(E,x,y,t)) - \ln(N(E,x,x,t)) = -\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} \int_x^y n(y,t)\mathrm{d}y - \mu(y-x),$$
$$N(E,x,y,t) = N(E,x,x,t) e^{-\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} \int_x^y n(y,t)\mathrm{d}y - \mu(y-x)},$$
$$N(E,x,x_0,t) = N(E,x,x,t) e^{-\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} \int_x^{x_0} n(y,t)\mathrm{d}y - \mu(x_0-x)}. \qquad (2.45)$$

Здесь $\sigma_{\mathrm{s}}(E) = \sigma_0 \alpha_{\mathrm{s}}(E) = \sigma_0 \dfrac{1}{1+\left(\dfrac{E-E_0}{\Gamma_\tau/2}\right)^2}$ – сечение резонансного поглощения "мессбауэровских" γ-квантов в источнике (см. §2 в Главе I), μ – линейный коэффициент их нерезонансного поглощения.

С учетом

$$N(E,x,x,t) = S_{\mathrm{s}} \frac{m(x,t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E), \qquad (2.46)$$

где χ – доля мессбауэровских переходов, сопровождающих акты распада материнских ядер, α – коэффициент конверсии, получим интенсивность мессбауэровских резонансных γ-квантов с энергией E на поверхности источника, интегрируя по x по всей толщине источника:

$$N(E,x_0,t) = \int_0^{x_0} S_{\mathrm{s}} \frac{m(x,t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) e^{-\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} \int_x^{x_0} n(y,t)\mathrm{d}y - \mu(x_0-x)} \mathrm{d}x. \qquad (2.47)$$

Пусть источник будет однороден по толщине, тогда $m(x,t) = m(t)$ и $n(y,t) = n(t)$ и

$$N(E,x_0,t) = S_{\mathrm{s}} \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) \int_0^{x_0} e^{-\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(x_0-x,t) - \mu(x_0-x)} \mathrm{d}x =$$
$$= S_{\mathrm{s}} \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) \left. \frac{e^{-(\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(t)+\mu)(x_0-x)}}{\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(t) + \mu} \right|_0^{x_0} =$$
$$= S_{\mathrm{s}} \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) \frac{1 - e^{-(\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(t)+\mu)x_0}}{\sigma_{\mathrm{s}}(E) f_{\mathrm{s}} n(t) + \mu} =$$
$$= S_{\mathrm{s}} \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) \frac{1 - e^{-\alpha_{\mathrm{s}}(E) t_{\mathrm{s}}(t) - \mu x_0}}{\alpha_{\mathrm{s}}(E) t_{\mathrm{s}}(t)/x_0 + \mu} =$$
$$= S_{\mathrm{s}} x_0 \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_{\mathrm{s}} W_{\mathrm{s}}(E) \frac{1 - e^{-\alpha_{\mathrm{s}}(E) t_{\mathrm{s}}(t) - \mu x_0}}{\alpha_{\mathrm{s}}(E) t_{\mathrm{s}}(t) + \mu x_0}. \qquad (2.48)$$

Здесь $t_s(t) = \sigma_0 f_s n_s(t)$ – эффективная толщина излучающего слоя и $n_s(t) = n(t)x_0$ – поверхностная плотность мессбауэровских ядер в источнике в данный момент времени t.

Как видим, линия испускания источника может существенно изменить свою форму и эффективную ширину, особенно при большой начальной интенсивности и со временем, когда число $n(t)$ дочерних резонансных (мессбауэровских) ядер велико:

$$n(t) = m(0) - m(t) = m(0)\left(1 - e^{-\frac{t}{T}}\right). \qquad (2.49)$$

Если нерезонансное поглощение преобладает над резонансным – $\mu x_0 >> t_s(t)$, то искажение формы линии излучения не происходит и плотность потока мессбауэровских резонансных (интенсивность испускания) γ-кванта с энергией E будет равна

$$N(E, x_0, t) = S_s \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_s W_s(E) \frac{1 - e^{-\mu x_0}}{\mu}.$$

Оценим эффективную толщину излучающего слоя источника ^{57}Co в 100 мКи. Пусть $\mu' \cong 200$ см^2/г – массовый коэффициент нерезонансного поглощения мессбауэровских γ-квантов в матрице Cr; $\rho_m = 7.2$ г/см^3 – объемная плотность для той же матрицы источника; максимальное сечение резонансного поглощения $\sigma_0 = 256 \cdot 10^{-24}$ м^2; вероятность эффекта в источнике $f_s \cong 0.7$. Тогда

$\mu = \mu' \rho_m \cong 200 \cdot 10^{-4} \cdot 10^3 \cdot 7.2 \cdot 10^3 \cong 1.4 \cdot 10^5$ м$^{-1}$; $\mu x_0 \cong 22$;

и на момент практически полного распада материнских ядер

$t_s = \sigma_0 f_s n x_0 \cong \sigma_0 f_s m(0) x_0 \cong 256 \cdot 10^{-24} \cdot 0{,}7 \cdot 6.4 \cdot 10^{26} \cdot 160 \cdot 10^{-6} \cong 18$.

Как видим, при обычных интенсивностях источника (<100 мКи) $\mu x_0 > t_s$.

Если резонансное поглощение преобладает над нерезонансным – $\mu x_0 << t_s$ (например, в случае большой активности источников, предназначенных для исследования резонансного рассеяния γ-квантов), тогда с учетом $W_s(E) = \frac{2}{\pi \Gamma_s} \alpha_s(E)$ получим:

$$N(E, x_0, t) = S_s \frac{m(t)}{T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_s W_s(E) \frac{1 - e^{-\alpha_s(E) t_s(t)}}{\alpha_s(E) t_s(t) / x_0} =$$

$$= \frac{2 S_s m(t)}{\pi \Gamma_\tau T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_s \frac{x_0}{t_s(t)} \left(1 - e^{-\alpha_s(E) t_s(t)}\right) =$$

$$= \frac{2S_s m(t)}{\pi \Gamma_\tau T} \cdot \frac{\chi}{1+\alpha} f_s \frac{x_0}{t_s(t)} \left(1 - e^{-\frac{t_s(t)}{1+\left(\frac{E-E_0}{\Gamma_\tau/2}\right)^2}} \right). \qquad (2.50)$$

Воспользуемся определением ширины линии на половине высоты:

$$N(E_0 + \Gamma_s/2) = N(E_0)/2. \qquad (2.51)$$

После ряда простых преобразований получим:

$$\left(1 - e^{-\frac{t_s(t)}{1+(\Gamma_s/\Gamma_\tau)^2}} \right) = \frac{1}{2}\left(1 - e^{-t_s}(t)\right),\ e^{-\frac{t_s(t)}{1+(\Gamma_s/\Gamma_\tau)^2}} = \frac{\left(1+e^{-t_s(t)}\right)}{2},$$

$$-\frac{t_s(t)}{1+\left(\Gamma_s/\Gamma_\tau\right)^2} = \ln\frac{\left(1+e^{-t_s}(t)\right)}{2},\ 1+\left(\Gamma_s/\Gamma_\tau\right)^2 = -\frac{t_s(t)}{\ln\left(1+e^{-t_s(t)}\right)-\ln 2},$$

$$\Gamma_s = \Gamma_\tau \sqrt{\frac{t_s(t)}{\ln 2 - \ln\left(1+e^{-t_s(t)}\right)} - 1}.$$

А с учетом малости t_s будем иметь

$$\Gamma_s \cong \Gamma_\tau \sqrt{\frac{t_s(t)}{\ln 2 - \ln 2 + t_s(t)/2 - t_s^2(t)/8} - 1} \cong \Gamma_\tau \sqrt{\frac{2}{1 - t_s(t)/4} - 1} \cong$$

$$\cong \Gamma_\tau + \Gamma_\tau \cdot 0.25 t_s(t). \qquad (2.52)$$

При этом в соответствии с (2.49) и (2.52) ширина линии источника будет возрастать со временем.

Заметим, что формуле (2.50) вместо естественной ширины линии Γ_τ может фигурировать несколько большая по величине ширина Γ_0, если существует другая причина уширения (например, за счет неоднородности окружения испускающих и поглощающих ядер ^{57}Fe в источнике). Если эта причина незначительно меняет лоренцевскую форму линии излучения $W_s(E)$ и сечения резонансного поглощения $\sigma_s(E)$, то с учетом нормировки можно записать:

$$W_s(E) = \frac{2}{\pi \Gamma_0} \cdot \frac{1}{1+\left(\frac{E-E_0}{\Gamma_0/2}\right)^2},$$

$$\sigma_s(E) = \sigma_0 \frac{\Gamma_\tau}{\Gamma_0} \cdot \frac{1}{1+\left(\frac{E-E_0}{\Gamma_0/2}\right)^2}.$$

В этом случае, как легко показать, вместо (2.52) для ширины линии источника на половине высоты будем иметь

$$\Gamma_s \cong \Gamma_0 + \Gamma_\tau \cdot 0.25 t_s(t). \qquad (2.53)$$

§7. Геометрический эффект

Существенное влияние на экспериментальный мессбауэровский спектр может оказать так называемый геометрический эффект. Под **геометрическим эффектом** будем понимать влияние геометрии мессбауэровского эксперимента на форму и параметры мессбауэровского спектра.

7.1. Влияние изменения угловой апертуры регистрируемого пучка

Угловая апертура регистрируемого пучка может меняться при движении источника относительно поглотителя за счет сильной коллимации пучка либо детектором, либо образцом. Рассмотрим наиболее часто встречаемый случай коллимации пучка детектором (см. рис. 2.16).

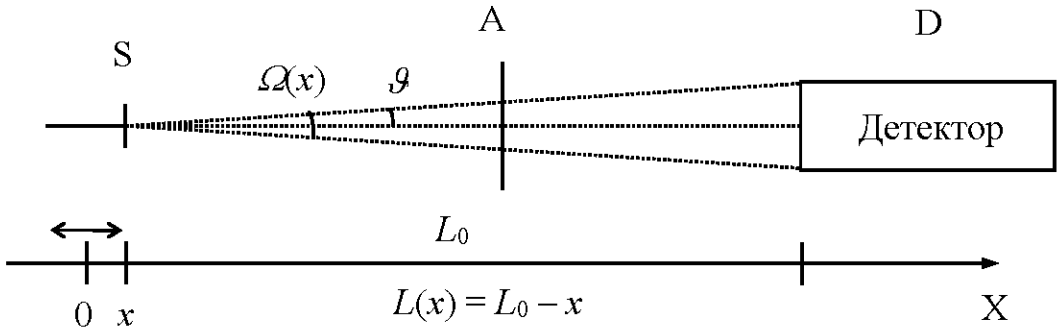

Рис. 2.16. К вопросу о геометрическом эффекте

Пусть диаметр образца d_A не меньше диаметра детектора d_D – $d_A \geq d_D$, а диаметр источника d_S гораздо меньше d_D – $d_S << d_D$, диаметр детектора d_D и смещение источника x гораздо меньше расстояния от источника до детектора L_0 – $d_D << L_0$ и $x << L_0$, тогда угловая апертура регистрируемого потока γ-квантов равна:

$$\Omega(x) \cong \frac{\pi d_D^2}{4L^2(x)} = \frac{\pi d_D^2}{4(L_0 - x)^2} = \frac{\pi d_D^2}{4L_0^2} \cdot \frac{1}{\left(1 - \frac{x}{L_0}\right)^2} \cong \frac{\pi d_D^2}{4L_0^2}\left(1 + \frac{2x}{L_0}\right) =$$

$$= \Omega_0\left(1 + \frac{2x}{L_0}\right).$$

Интенсивность счета γ-квантов пропорциональна угловой апертуре – $N(x) \sim \Omega(x)$, следовательно:

$$N(x) = N_0\left(1 + \frac{2x}{L_0}\right). \qquad (2.54)$$

Запишем законы изменения доплеровской скорости $\upsilon(t)$ и координаты $x(t)$ источника со временем t в случае его движения с постоянным ускорением a и треугольной формой временной зависимости скорости движе-

ния источника относительно поглотителя υ (см. рис. 2.2.б и 2.17) при $t \le T/2$:

$$a = 2\frac{\upsilon_{\max} - \upsilon_{\min}}{T} = 2\frac{\Delta\upsilon}{T};\ \upsilon = \frac{2\Delta\upsilon}{T}(t - t_0);\ x(t) = \frac{\Delta\upsilon}{T}(t - t_0)^2. \qquad (2.55)$$

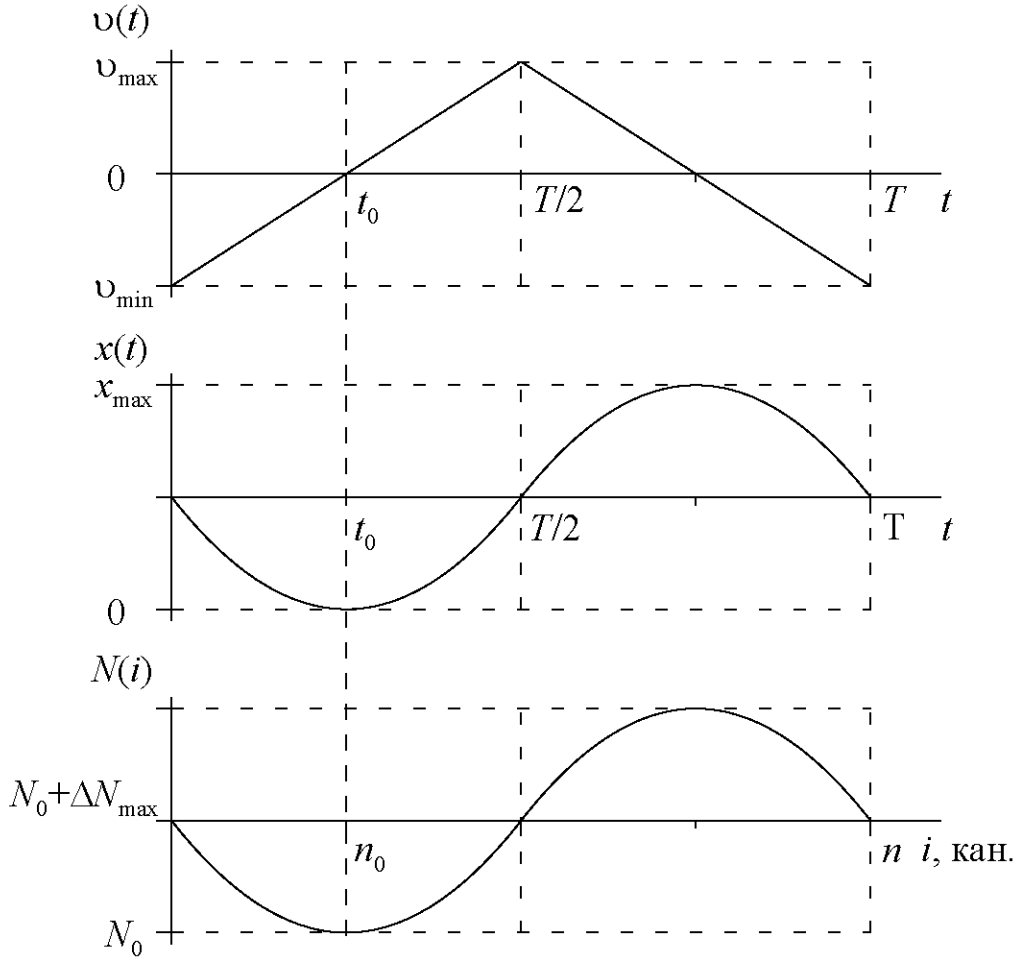

Рис. 2.17. Временные зависимости кинематических характеристик источника и зависимость интенсивности γ-квантов от номера канала

Здесь t_0 – момент времени, когда доплеровская скорость движения источника относительно поглотителя равна нулю, а расстояние между источником и детектором максимально и равно L_0 (рис. 2.17). В таком случае интенсивность счета γ-квантов окажется зависящей от доплеровской скорости υ и номера канала i регистрации даже в отсутствие резонансного поглощения (рис. 2.17):

$$N(t) = N_0\left(1 + \frac{2\Delta\upsilon}{T}\cdot\frac{(t - t_0)^2}{L_0}\right) =$$

$$= N(\upsilon) = N_0\left(1 + \frac{T}{2\Delta\upsilon L_0}\upsilon^2\right) = N_0\left(1 + \alpha\upsilon^2\right) =$$

$$= N(i) = N_0\left(1 + \frac{2\Delta\upsilon T}{L_0}\left(\frac{i - n_0}{n}\right)^2\right) = N_0\left(1 + \beta(i - n_0)^2\right). \qquad (2.56)$$

Здесь T – период изменения скорости, $\alpha = \dfrac{T}{2\Delta\upsilon L_0}$, $\beta = \dfrac{2\Delta\upsilon T}{n^2 L_0}$ и учтено, что время t и номер канала i анализатора связаны линейно:

$$\frac{t - t_0}{T} = \frac{i - n_0}{n}, \qquad (2.57)$$

где n – полное число каналов, n_0 – нулевой канал, соответствующий доплеровской скорости $\upsilon = 0$.

Как видим, в результате геометрического эффекта экспериментальный мессбауэровский спектр будет модулирован параболической функцией от доплеровской скорости υ и номера канала i в спектре (см. (2.56) и рис. 2.17)

Оценим величину геометрического эффекта и статистику, при которой им можно пренебречь. При $\Delta\upsilon = 20$ мм/с, $T = 0.1$ с и $L_0 = 20$ см:

$$\Delta N_{\max} = N_0 \beta n_0^2 \le S_{N_0} = \sqrt{N_0}, \; N_0 \le \left(\frac{1}{\beta n_0^2}\right)^2,$$

$$N_0 \le \left(\frac{n^2 L_0}{2\Delta\upsilon T n_0^2}\right)^2 = \left(\frac{8L_0}{\Delta\upsilon T}\right)^2 = \left(\frac{8 \cdot 0.2}{20 \cdot 10^{-3} \cdot 0.1}\right)^2 = 6.4 \cdot 10^5 \text{ имп}.$$

Как видим, даже при достаточно большом расстоянии от источника до детектора $L_0 = 20$ см в случае статистики в спектре ~10^6 и более необходимо учитывать геометрический эффект.

Заметим, что при использовании треугольной формы временной зависимости скорости $\upsilon(t)$ движения источника относительно поглотителя (рис. 2.17) одновременно регистрируются два зеркально отображенных мессбауэровских спектра с одинаковым по величине и противоположным знаком геометрическим эффектом. В случае инверсного сложения этих спектров относительно номера канала, соответствующего максимальной скорости движения источника (см. рис. 2.17) геометрический эффект для результирующего спектра практически пропадает.

7.2. Влияние угла вылета γ-кванта

Из-за не равного нулю угла вылета из источника γ-кванта ϑ (см. рис. 2.16) будет наблюдаться смещение резонансных линий в область больших по абсолютной величине значений доплеровской скорости υ и асимметрия линий с их одновременным уширением (см., например, [30, 31]).

§8. Качество спектра и оптимизация эксперимента

В обычном, широком, смысле слова спектр высокого качества можно определить как спектр, содержащий достаточно детальную информацию о совокупности параметров спектра, таких как ширины $\{\Gamma_i\}$, амплитуды $\{A_i\}$ и положения $\{\upsilon_i\}$ на шкале доплеровских скоростей компонент спектра (резонансных линий). Известно множество факторов, определяющих качество спектра. К наиболее важным среди них относятся: число точек в спектре, приходящихся на резонансную линию (линейная плотность точек в спектре), исследуемый диапазон скоростей $\Delta\upsilon$, набранное число импульсов при расстройке резонанса N_∞ (статистика в спектре), геометрия опыта и др. Понятно, что информативность спектра в существенной мере зависит от того, как на фоне статистического шума в спектре проявляются интересующие нас компоненты. Поэтому для описания качества спектра можно ввести характеристику спектра, которая так и называется "качество спектра" Q. По определению **качество спектра** $Q(\upsilon)$ – это отношение видимой величины эффекта $\Delta N(\upsilon)$ к максимальному стандартному отклонению статистических ошибок $S_{N_\infty} = \sqrt{N_\infty}$ (см. §2), которое в спектрах поглощения достигается в отсутствие резонанса:

$$Q(\upsilon) \equiv \frac{\Delta N(\upsilon)}{S_{N_\infty}} \equiv \frac{N_\infty - N(\upsilon)}{\sqrt{N_\infty}}. \qquad (2.58)$$

Качество спектра Q(υ) существенно зависит от статистики в спектре и непосредственно связано со временем регистрации спектра t, причем:

$$Q(\upsilon) = \frac{N_\infty - N(\upsilon)}{\sqrt{N_\infty}} = \frac{N_\infty - N(\upsilon)}{\chi \cdot N_\infty}\chi\sqrt{N_\infty} = \eta(\upsilon)\chi\sqrt{N_\infty} \sim \sqrt{t}. \qquad (2.59)$$

Заметим, что качество спектра – понятие относительное и зависит от величины эффекта в той области спектра, которая для исследователя наиболее интересна.

Опираясь на физическую величину – качество спектра $Q(\upsilon)$, можно осуществить выбор оптимальной толщины образца и оптимального режима работы спектрометра. Поскольку по мере увеличения толщины образца увеличивается величина эффекта $\eta(\upsilon)$ (см. (2.27)), а доля χ γ-квантов мессбауэровского перехода уменьшается из-за различных значений линейных коэффициентов нерезонансного поглощения, причем, как правило $\mu_m >> \mu_{nm}$ (см. §3), то при проведении эксперимента для повышения качества спектра (2.59) необходимо подбирать оптимальную толщину образца.

В качестве удобного параметра, характеризующего оптимальность выбора толщины образца (без учета т.н. "эффекта насыщения", см. §3 и далее §7 в Главе III) может служить **максимальное качество спектра** – качество спектра при доплеровской скорости υ_{max}, при которой величина эффекта максимальна

$$K_{\text{обр}} \equiv Q(\upsilon_{\max}) = \frac{\Delta N(\upsilon_{\max})}{\sqrt{N_\infty}} = \frac{N_\infty - N(\upsilon_{\max})}{\sqrt{N_\infty}}. \qquad (2.60)$$

Так как величина эффекта $\eta(\upsilon)$ (см. (2.27)) зависит только от используемого источника и исследуемого образца, то отношение качества спектра $Q(\upsilon)$ к величине эффекта $\eta(\upsilon)$ –

$$K_{\text{апп}} \equiv \frac{Q(\upsilon)}{\eta(\upsilon)} = \frac{\chi N_\infty}{\sqrt{N_\infty}} = \frac{N_{\text{m}}}{\sqrt{N_\infty}} = \frac{N_\infty - N_{\text{nm}}}{\sqrt{N_\infty}} - \qquad (2.61)$$

может служить удобным параметром, характеризующим оптимальность настройки аппаратуры (выбора детектора, окна дискриминатора, коэффициента усиления, напряжения на фотоэлектронном умножителе и т.д.) при фиксированном времени съемки. Строго говоря, для каждого исследуемого образца требуется своя настройка. Однако опыт показывает, что достаточно провести настройку только для одного, характерного для данной серии подобных образцов.

Введение качества спектра $Q(\upsilon)$ позволяет не только оптимизировать параметры настройки аппаратуры спектрометра, но и проводить сравнение эффективности работы различных мессбауэровских спектрометров. Для этого достаточно сравнить параметры $K_{\text{апп}}$ спектрометров или максимальные качества $Q_{\max}$ спектров одного и того же образца, получаемых на разных спектрометрах при одинаковом времени съемки. Если же времена съемки разные, то достаточно сравнить для разных спектрометров величины $K_{\text{апп}} / \sqrt{t}$ или $Q_{\max} / \sqrt{t}$.

Для экспериментального определения параметра $K_{\text{апп}}$, характеризующего эффективность работы аппаратуры (2.61), кроме интенсивности счета в отсутствие резонанса N_∞ необходимо знать долю γ-квантов с энергией мессбауэровского перехода $\chi \equiv \frac{N_{\text{m}}}{N_\infty} = \frac{N_\infty - N_{\text{nm}}}{N_\infty}$. Покажем как это можно сделать для мессбауэровских ядер ^{57}Fe. В этом случае проводится серия простых опытов с нерезонансными поглотителями различной толщины, заведомо поглощающих γ-кванты с энергией мессбауэровского перехода – 14.4 кЭ (удобнее всего с набором совершенно одинаковых поглотителей, например, медных фольг). Эти поглотители помещаются между образцом и детектором. В опыте регистрируется интенсивность счета γ-квантов $N_\infty(d)$, прошедших через исследуемый образец и нерезонансные поглотители толщиной d (в произвольных единицах, например в числе одинаковых по толщине нерезонансных поглотителей – см. рис. 2.18) при доплеровской скорости, достаточной для полной расстройки резонанса.

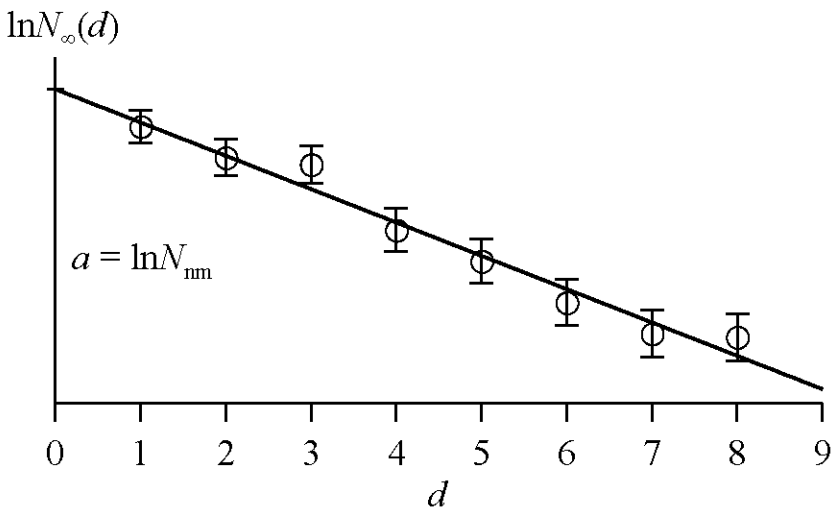

Рис. 2.18. Зависимость логарифма интенсивности γ-квантов в отсутствие резонанса от толщины нерезонансного поглотителя d

С учетом нерезонансного поглощения можно записать:

$$N_\infty(d) = N_\mathrm{m}(d) + N_\mathrm{nm}(d) = N_\mathrm{m} e^{-\mu_\mathrm{m} d} + N_\mathrm{nm} e^{-\mu_\mathrm{nm} d}. \qquad (2.62)$$

Т.к. для линейных коэффициентов нерезонансного поглощения характерно сильное неравенство $\mu_\mathrm{m} >> \mu_\mathrm{nm}$, то при достаточно больших d получим:

$$N_\infty(d) \cong N_\mathrm{nm} e^{-\mu_\mathrm{nm} d} \text{ и } \ln N_\infty(d) \cong \ln N_\mathrm{nm} - \mu_\mathrm{nm} d. \qquad (2.63)$$

Как видим логарифм интенсивности счета γ-квантов $N_\infty(d)$ практически линейно зависит от толщины нерезонансного поглотителя d (см. рис. 2.18).

Искомая доля γ-квантов χ с энергией мессбауэровского перехода оказывается равной

$$\chi \equiv \frac{N_\mathrm{m}}{N_\infty} = \frac{N_\infty - N_\mathrm{nm}}{N_\infty} = 1 - \frac{e^a}{N_\infty}, \qquad (2.64)$$

где $a \equiv \ln N_\mathrm{nm}$ – величина, отсекаемая на оси ординат прямой, проведенной по экспериментальным точкам (рис. 2.18). Сама величина a с оценкой ее ошибки может быть получена методом наименьших квадратов. При этом необходимо учесть, что стандартное отклонение случайных ошибок величины $y \equiv \ln N_\infty(d)$ зависит от толщины d и равно $S_y = \dfrac{1}{\sqrt{N_\infty(d)}}$.