

# 扰动角关联在化学中的应用

范 我 张叔鸣

扰动角关联方法作为一种现代物理工具,近二十年来发展很快。七十年代的研究着重于建立一个完善的方法及主要在物理上用于超精细相互作用的测定;而到了八十年代,除了物理应用以外,大量的研究已经渗透到固体材料<sup>[1][2]</sup>、金相物理<sup>[3]</sup>、生物医学包括人体器官的造影<sup>[4]</sup>等方面,其成果也十分明显。可以预料,随着扰动角关联理论和技术的不断发展和完善,它的应用将越来越深入到各个不同的领域和新兴学科中。扰动角关联(PAC)方法应用在化学上,目前虽不如穆斯堡尔效应那样广泛和深入,也没有积累那么多资料,但是作为研究原子核周围环境的探针,它可以测定许多参数,从而得到有关电子在原子、分子中的分布、化学键的性质、电子和自旋密度的信息。因此,在理论化学、结构化学以及高温相转换、金属络合物溶液化学、大分子旋转等方面,引起了化学家们的重视。一个典型的例子是,Sato等人早在1966年通过PAC方法的研究就指出了高铼酸盐被辐照以后,有一部分<sup>185</sup>Re不是以ReO<sub>4</sub>的状态存在,但直到1974年,放射化学方法才修正了ReO<sub>4</sub>辐照后100%保留的错误观点。

PAC方法对于固体化学,特别是金属的研究,有许多优点。由于它对测定核辐射的高灵敏度,因此可以研究极稀释的体系,而不存在经典的NMR或NQR方法中的趋肤效应;它又不像比热和核取向方法那样受低温的限制,PAC方法测定的温度范围可以从mK至超过金属或合金的熔点。穆斯堡尔效应由于Debye-Waller因子的温度依赖性而使高温下电场梯度与温度关系的研究受到限制。而PAC方法则优于穆斯堡尔法。另外,在PAC方法中,同质异能 $\gamma$ 辐射不需要穆斯

堡尔效应那样的基态跃迁,因此扩大了可利用核素的范围。PAC方法还可作为穆斯堡尔谱的补充,用于缺乏容易得到 $\gamma$ 共振同位素的元素。

当然,PAC方法也有缺点。例如,电单极相互作用不引起角关联的扰动,这样,它和穆斯堡尔谱的同质异能移就无法相比。另外PAC的数据获取和处理也较穆斯堡尔法耗时和复杂。

扰动角关联用于化学研究,目前还不普遍,主要原因在于没有很完整的理论对所得到的数据进行一目了然的解释。实验方法上没有现成的、精确的仪器可利用,它主要靠核物理实验室的常规设备,这对不熟悉核物理的化学家来说,有很多困难。而核物理学家对于理论化学、立体化学等方面的有限知识也妨碍了他们从化学的角度进行数据的精辟分析和对实验结果的深入探讨。但是不管存在着种种困难,扰动角关联应用于化学正在引起科学家们的重视<sup>[6]</sup>。

本文拟向化学家介绍一种正在发展而还远未达到成熟的方法。由于磁扰动和粒子- $\gamma$ 关联在化学中用得很少,因此本文的重点限于 $\gamma$ - $\gamma$ 级联的电四极扰动在化学中的应用。其他方面的应用可参考[6]。

## 一、扰动角关联基础

### 1. $\gamma$ - $\gamma$ 角关联和角关联函数的电四极扰动

一个放射性核发射光子的几率与核自旋轴和发射方向之间的角度有关。为了观察连续发射的两条 $\gamma$ 射线之间的方向关联,我们选择 $\gamma_1$ 的发射方向固定,测量 $\gamma_2$ 的强度作为对固定方向的角度为 $\theta$ 的函数,可得到两个

光子的方向角关联。通过一个快符合线路保证 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 从同一个核发射。选择 $\gamma_1$ 的发射方向为量子化的z轴，角关联函数 $W(\theta)$ 就是对z轴角度为 $\theta$ 的 $\gamma_2$ 的发射几率，它与中间的m态的相对密度、跃迁几率和每个组分的方向分布有关。角关联函数的表达式为： $W(\theta) = \sum_k A_k P_k(\cos\theta)$ ，其中 $P_k(\cos\theta)$ 为Legendre多项式，一般取 $k=2$ 或 $k=2$ 和 $4$ 。归一化至 $A_0=1$ ，得到：

$$W(\theta) = 1 + A_2 P_2(\cos\theta) + A_4 P_4(\cos\theta)$$

$A_k$ 中包含了与跃迁的始态、中间态和终态有关的核参数，也包括了纯跃迁和混合跃迁的情况。典型的 $W(\theta)$ 随 $\theta$ 的变化可参阅[7]。在角度 $\theta$ 时的计数率 $N(\theta)$ 与时间有关： $N(\theta, t) = W(\theta) e^{-t/\tau}$ ， $\tau$ 为中间态寿命。对无限的

测量时间积分，得到： $N(\theta) = W(\theta) \int_0^\infty e^{-t/\tau} dt = \frac{1}{\tau} W(\theta)$ 。 $\gamma$ - $\gamma$ 角关联的各向异性

$$u = \frac{W(\pi) - W(\frac{\pi}{2})}{W(\frac{\pi}{2})}$$

，若忽略 $A_4$ 进行简化，

$$u = \frac{3A_2}{2 - A_2}$$

可通过探测器在 $180^\circ$ 和 $90^\circ$ 方向上

两次测量得到。

上述角关联函数只适用于中间态m的态密度在发射 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 之间的时间间隔内不变的情况。当中间态的电四极矩 $Q$ 和外电场梯度

$\frac{\partial^2 V}{\partial Z^2}$ 耦合时，除非中间能级的寿命极短，否

则这个条件不再满足。这时角关联图象发生改变，出现了衰减。当 $\gamma_1$ 的发射方向确定了对称轴时，衰减可以半经典地用围绕对称轴的中间态自旋的进动来表示，这时角关联函数受到“扰动”。量子力学上，这种相互作用产生非简并的m态之间的跃迁，使m态的态

密度 $P(m)$ 发生了变化， $\gamma_2$ 则从改变了态密度的m态发射。受扰动的角关联函数与时间有关，归一化以后得到

$$W(\theta, t) = 1 + \sum_k A_k G_k(t)$$

$G_k(t)$ 称为扰动因子。当 $\gamma_1$ 的发射产生原始的m态时， $G_k(t) = 1$ 。然后它稳定地或周期性地下降，使关联的各向异性出现衰减或相位差。当 $G_k(t)$ 下降到零时，角关联消失，光子的发射为各向同性。

这个表达式假设核参数 $A_k$ 与扰动场无关。 $G_k(t)$ 与中间态自旋有关，从中可以得到相互作用的性质、强度和方向的信息，进一步了解四极频率、电场梯度组分和关联时间的情况。核外电场梯度主要由衰变核子周围的化学环境引起。当衰变核子的非球形壳层电子云或非立方晶格中的离子引起衰变核周围的电荷分布低于它的立方对称的电荷分布以及非立方对称金属中的导体电子存在时，就形成了核外电场梯度，这是化学家们很感兴趣的。

$G_k(t)$ 的值通过静态的任意取向的和与时间有关的电四极相互作用得到。在静态相互作用中，表示扰动的进动频率 $\omega$ 与 $Q$ 和 $\frac{\partial^2 V}{\partial Z^2}$ 成正比。在时间相关的相互作用中，扰动可用常数 $\lambda$ 来表示。当m态外推到单位态密度时， $\lambda$ 为相应的弛豫常数。

为了使角关联受到扰动，中间态寿命 $\tau$ 必须足够长。另外，核外电场必须大到足以影响角关联。上述电场梯度的数量级为 $10^{18} - 10^{19} \text{V/cm}^2$ 。在现代实验技术中应满足 $\omega\tau \geq 0.01$ 或 $\lambda\tau \geq 0.01$ 。当 $\omega$ 达到 $1000 \text{Mrads}^{-1}$ 的角速度时， $\tau$ 的下限为 $10^{-11} \text{s}$ 。

扰动因子 $G_k(t)$ 通过“时间微分扰动角关联”(TDPAC)方法来测定。在符合单元的分辨时间 $2t_r$ 内测得的扰动值可以保证测量的光子由同一个核发射。在角度 $\theta$ 和时间 $t$ ，从 $(t-t_r)$ 到 $(t+t_r)$ 的时间间隔中，得到的实验角关联函数为：

$$W(\theta, t)_{\text{exp}} = \frac{\int_{t-tr}^{t+tr} W(\theta, t) e^{-t/\tau} dt}{\int_{t-tr}^{t+tr} e^{-t/\tau} dt}$$

一般用于TDPAC的符合线路的  $2tr$  值为 2 至  $3ns$ ，因此TDPAC 方法可用于寿命大于几  $ns$  的核，上限约为  $1\mu s$ 。如果  $\tau$  更长，真偶符合比很低，测量无意义。

假如  $\tau \ll t$  (实际上只要时间窗  $2tr > 4\tau$ )，积分上限取无穷大，这时得到“积分扰动角关联” (IPAC) 函数：
$$W(\theta, \infty) = \frac{1}{\tau} \int_0^{\infty} W(\theta, t) e^{-t/\tau} dt$$
。从中导出  $t=0$  和  $t=\infty$  之间的权重平均  $\overline{W(\theta, \infty)} = \sum_k A_k \overline{G_k(\infty)}$ 。若忽略  $A_1$ ，从各向异性  $u$  可以得到  $A_2 \overline{G_2(\infty)}$ 。只有当中间态寿命短于  $1ns$  时，才可能测得积分角关联函数。

## 2. 静态相互作用

核外电场有静态的和时间相关的场。首先考虑一个轴对称的单晶中的静态相互作用。量子化的  $m$  态的态密度沿着对称轴保持不变，这时如果对称轴指向一个探测器的方向，则沿发射方向的量子化的  $m$  态密度改变，从而引起角关联的衰减，如图 1。在多晶源中，这种状态存在于每一个微晶甚至每一个核子中。由于核中总有某一部分受到使关联不被扰动或只有轻微衰减的这样一个方向的静电相互作用，因此多晶源中的角关联不会完全消失，静态相互作用的特点是不能把关联降到“硬核”值以下。

目前扰动角关联用于化学研究的核大多具有  $I = \frac{5}{2}$  的中间态。由于篇幅有限，我们着重讨论  $I = \frac{5}{2}$  的核。对于轴对称的电场梯度，中间态的三个双简并能级 ( $m = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{5}{2}$ ) 的能量可以从公式计算：

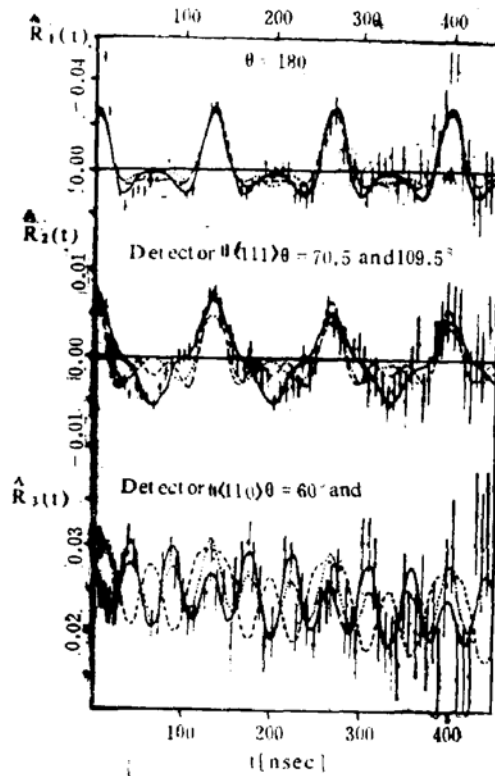


图1. 在单晶体中探测器方向对  $R(t)$  谱的影响

$$E(m) = \frac{eQ V_{zz}}{4I(2I-1)} [3m^2 - I(I+1)] = \omega_Q \hbar [3m^2 - I(I+1)]$$

其中  $V_{zz}$  是  $z$  方向电场梯度的主要组分，四极

频率  $\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar}$ 。  $E(m)$  态的本征值

为： $E(\pm \frac{5}{2}) = 10\omega_Q \hbar$ ，  $E(\pm \frac{3}{2}) = -2\omega_Q \hbar$ ，

$E(\pm \frac{1}{2}) = -8\omega_Q \hbar$ 。在谐波频率  $\omega_1 = 6\omega_Q$ 、

$\omega_2 = 12\omega_Q$  和  $\omega_3 = 18\omega_Q$  时，或用角频率  $\omega_0$  (相应于最小不消失能量差) 表示， $\omega_0 = 6\omega_Q$ ，

当  $\omega_0$ 、 $2\omega_0$  和  $3\omega_0$  时， $\pm m$  态之间发生容许跃迁。跃迁的角关联通过  $G_k(t) = \sum_n S_{kn} \cos n\omega_0 t$

衰减， $S_{kn}$  为不同的超精细能级之间的跃迁几率，可查表得到。

(i) TDPAC 中， $n = \frac{1}{2} |m^2 - m'^2|$ ，由

此 $n = 0, 1, 2, 3$ , 则  $G_k(t) = S_{k_0} + \sum_{n=1}^3 S_{k_n} \times \cos n\omega_0 t$ , 如忽略 $A_k$ 并归一化使 $S_{00} = 1$ , 则可简化上式为:

$$G_2(t) = \frac{1}{5} \left( 1 + \frac{13}{7} \cos\omega_0 t + \frac{10}{7} \cos 2\omega_0 t + \right.$$

$$\left. \frac{5}{7} \cos 3\omega_0 t \right), \text{ 此函数周期为 } 2\pi. \text{ 对于不}$$

同的自旋值和核外场, 图象有明显的差别。从 $G_2(t) \sim \omega_0 t$  曲线中, 首先可得到四极频率 $\omega_0$ , 然后得到电场梯度组分 $V_{zz}$ 。下列几个因素对扰动函数曲线的形状有明显的影响:  
(1) 符合线路的分辨时间。它使 $t$ 时刻测得的扰动因子实际上为

$$G_k(t) = \int G_k(t') P(t' - t) dt', \text{ 其中 } P(t') \text{ 为瞬}$$

时分辨曲线。假如分辨函数近似为宽度等于 $t_r$ 的高斯分布函数, 则 $G_k(t)$ 必须乘以一个校正项  $\exp(-\frac{1}{2} \omega_n^2 t_r^2)$ , 从而在高频率

时 $G_k(t)$ 减弱很多。(2) 电场梯度 (EFG) 的不对称性。在大多数情况下, 四极场不是轴对称, 可以用一个不对称参数 $\eta$ 来衡量,  $\eta =$

$$\frac{|V_{xx} - V_{yy}|}{V_{zz}}, \text{ 其中 } V_{xx}, V_{yy}, V_{zz} \text{ 为电场梯度}$$

张量的三个组分, 对斜方晶系的场,  $|V_{zz}| \geq |V_{yy}| \geq |V_{xx}|$ , 并且根据泊松方程,  $V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} = 0$ 。此时 $m$ 不再是好量子数,  $m$ 态的本征值用一系列 $\eta$ 来近似描述。图2显示了 $m$ 能级随 $\eta$ 的飘移。三个跃迁频率与 $\eta$ 有关, 除了 $\eta = 1$ 以外, 它们不再是谐波, 但 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 的关系依然成立。 $\omega_1/\omega_0$ 和 $\omega_2/\omega_1$ 随 $\eta$ 变化,  $S_{k_n}$ 也随 $\eta$ 而变化, 见文献[7]。由 $\eta$ 引起 $G_k(t)$ 扰动函数曲线的变化很灵敏, 如图3。(3) 样品的性质。多晶样品的不均匀性, 晶格的缺陷以及产生 $\gamma$ - $\gamma$ 级联放射性衰变的局部后效应等各种影响使电场梯度从核子到核子发生变化, 它可以用高斯分布来描绘:  $P(\omega - \bar{\omega}_n) d\omega$

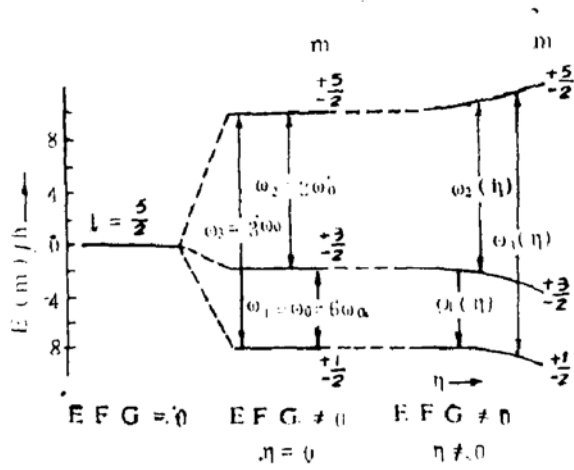


图2.  $I = \frac{5}{2}$  态在轴对称和不对称电场梯度下的分裂

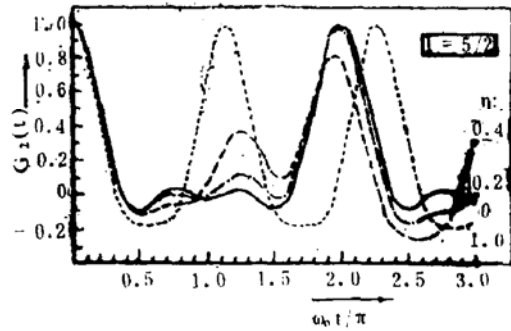


图3. 多晶源中斜方晶系四极相互作用的微分衰减因子 $G_2(t)$

$$= \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left\{-\left(\frac{\omega - \bar{\omega}_n}{\sqrt{2}\sigma}\right)^2\right\} d\omega, \text{ 其中 } \bar{\omega}_n$$

为分布中心,  $\sigma$ 为分布宽度, 令相对宽度 $\delta = \frac{\sigma}{\bar{\omega}_n}$ , 得到频率平均的扰动因子

$$\begin{aligned} \overline{G_k(t)} &= \frac{\int G_k(t) P(\omega - \bar{\omega}_n) d\omega}{\int P(\omega - \bar{\omega}_n) d\omega} \\ &= S_{k_0} + \sum_{n=1}^3 S_{k_n} \exp\left\{-\frac{1}{2} (\delta_n \bar{\omega}_n t)^2\right\} \\ &\quad \times \cos \omega_n t. \end{aligned}$$

当 $\omega_0$ 很高时, 即使频率分布很小, 分辨各种

场之间的不对称性也很困难。因此，例如对于 $^{181}\text{Ta}$ ，当分辨时间为 $1\text{ns}$ 时，实际可工作频率的上限为 $300\text{Mrads}^{-1}$ ，由于符合测量的统计性和中间态寿命的限制，下限为 $15$ 至 $20\text{Mrads}^{-1}$ 。

(ii) IPAC中：

$$\overline{G_k(\infty)} = \frac{1}{\tau} \int_0^\infty e^{-t/\tau} \sum S_{k_n} \cos \omega_n t dt$$

$$= S_{k_0} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{S_{k_n}}{(1 + \omega_n \tau)^2} \circ$$

对于无穷大的强相互作用， $\overline{G_k(\infty)}$ 降到“硬核”值 $S_{k_0}$ ，在轴对称的电场梯度中可得到 $\overline{G_2(\infty)}_{lim} = 0.200$ 和 $\overline{G_4(\infty)}_{lim} = 0.111$ 。硬核对频率分布和不对称参数不灵敏。当频率分布大时，TDPAC图形变得不规则，可以从IPAC参数来估计 $\omega_0$ 。

### 3. 时间相关的相互作用

在这种相互作用中，每个核子中场的方向任意地连续变化，不存在使 $m$ 态密度保持一定的量子化轴。在一定条件下，方向关联会变成各向同性，这与静电相互作用完全不同。

由于电场对称轴的变化，使电场的大小和方向发生波动，电场梯度和四极频率变得和时间有关。当各向同性的波动快到足以使

关联时间 $t_c \ll \tau$ 和 $t_c \ll \frac{2\pi}{\omega_0}$ 时，得到指数衰减因子 $G_k(t) = \exp(-\lambda_k t)$ ，其中弛豫常数

$$\lambda_k = \frac{3}{80} \left( \frac{eQ}{\hbar} \right)^2 \langle V_{zz}^2 \rangle t_c k(k+1)$$

$\times \left[ \frac{4I(I+1) - k(k+1)}{I^2(2I-1)^2} \right]$ ， $\lambda_4/\lambda_2$ 的比值是特征的，当 $I = \frac{5}{2}$ 时，对于时间相关的纯电四极相互作用， $\lambda_4/\lambda_2 = 1.66$ ，磁相互作用 $\lambda_4/\lambda_2 = 0.588$ 。在IPAC中， $\overline{G_k(\infty)} = \frac{1}{\tau} \int_0^\infty e^{-t/\tau}$

$\times dt = \frac{1}{1 + \lambda_k \tau}$ 。当 $\lambda_k \tau$ 很大时， $\overline{G_k(\infty)}$ 趋向于

零，角关联为各向同性。 $\overline{G_k(\infty)}$ 是否降到 $0.2$ 以下可用来区分静电的还是时间相关的相互作用。在放射性稀水溶液中， $t_c \approx 10^{-11}\text{s}$ ，使 $\lambda_k \tau \ll 1$ ，角关联的衰减很小。

关联时间与溶液中介质的粘度和分子大小

的关系可用Debye公式表示： $t_c = \frac{4}{3} \pi a^3$

$\times \frac{\eta}{kT} x$ ，其中： $a$ 为分子半径， $\eta$ 为介质粘

度， $T$ 为温度， $x$ 为 $0-1$ 之间的系数。Mars-

hall等人认为，对于 $t_c \gg \tau$ 和 $t_c \gg \frac{2\pi}{\omega_0}$ 的分子

的慢运动，其相互作用保持不变，与分子轴显示的局部结构有关。当 $t_c \gg \tau$ 时，弛豫过程可用慢旋转的扩散过程来表示，配位体结构随分子的旋转而变化，扰动因子可写成 $G_k(t) = G_k(t)_{static} e^{-\lambda_k t}$ ，其中 $G_k(t)_{static}$ 是由静电相互作用引起的扰动，此式被特别应用于测定凝固基质中金属离子的旋转关联时间与温度的关系。对于球形对称分子， $\lambda_k$ 与旋

转扩散系数 $D$ 有关， $\tau_k = \frac{1}{\lambda_k} = \frac{1}{k(k+1)D}$ 。

当 $\tau_k$ 较大时，可忽略静态相互作用引起的衰减，而 $\eta$ 或 $\delta$ 引起衰减因子的变化也会削弱旋转扩散的作用。因此，IPAC比TDPAC更清楚地反映分子的慢运动。

### 4. 磁偶极相互作用

在静态磁场中，能量本征值为 $E(m) = -\mu_B m / I (-I \leq m \leq +I)$ ，它具有Larmor跃迁频率： $\Delta m = 1$ ， $\omega_L = [E(m+1) - E(m)] / \hbar = \mu_B / \hbar I = -g \mu_N B / \hbar$ ， $E(m) = \omega_L \hbar m$ ，扰动因子 $G_2(t) = \cos 2\omega_L t$ （磁场归一化至探测器平面）。

当探针原子受到不同的扰动时，对于多晶样品和 $\eta = 0$ 的条件下，有一个总的扰动因

子。电四极相互作用中,  $G_2(t) = \sum_{n=0}^3 S_{2n} (f_0 + \sum_{i=1}^n f_i e^{-\sigma_i} \cos(n\omega_0 t))$ . 磁偶极相互作用中,  $G_2(t) = f_0 + \sum_{i=1}^n f_i e^{-\sigma_i} \cos(\omega_L t)$ , 其中  $f_0$  为不扰动部分,  $f_i$  为与单个的相互作用频率  $\omega_0$  或  $\omega_L$  有关的扰动部分。

**5. 实验**

(1) 核素: 要求所用的核素具有合适的半衰期和中间态寿命 (一般为10—100ns), 好的分支比, 内转换尽量少, 因为它本身不引起角关联的扰动。目前用于化学研究的核素大部分限于  $^{181}\text{Hf}$  和  $^{111}\text{In}$  产生的  $^{181}\text{Ta}$  和  $^{111}\text{Cd}$  的激发态。放射性强度一般为几十微居里。

(2) 仪器: 图4是用于 PAC 测量的快慢符合线路, 由三个 NaI(Tl) 探测器组成<sup>[8]</sup> (A—放大器, CF—恒分甄别器, S—单道分析器, E—定标器, C—符合单元, T—时间—脉冲高度转换器, B—阈放大器, MCA—多道分析器)。其中快符合线路用以建立两个  $\gamma$  光子之间的时间关联。 $\gamma_1$  跃迁向 TAC 提供一个起始信号,  $\gamma_2$  给出一个终止信号, 从 TAC

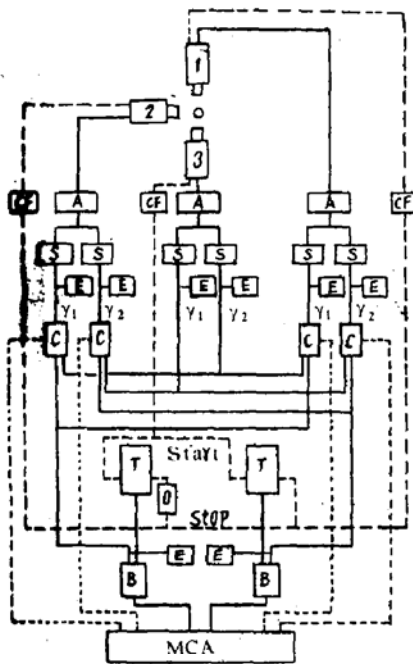


图4. 用于PAC测量的电子学线路。1和2为固定探测器, 3为可动探测器。

的输出可以测量两个事件之间的时间差。慢符合单元通过单道分析器分别选择与起始信号相应的能量  $E_1$  和与终止信号相应的能量  $E_2$  的脉冲, 能量符合的信号触发一个门, 使 TAC 输出, 进入多道分析器, 即可记录到一定能量和时间间隔中发出的事件。探测器 D1 和 D2 固定在垂直位置, 探测器 D3 与 D1 成  $180^\circ$ 、 $90^\circ$  和  $135^\circ$  的角度移动。对于 D3, 在每个位置可以同时记录  $D_{31}-D_{12}$ 、 $D_{31}-D_{22}$ 、 $D_{32}-D_{21}$  和  $D_{32}-D_{11}$  四个时间谱 ( $D_{ij}-i$  探测器,  $j$  光子), 其分辨时间约为 3ns。用四个探测器进行 PAC 测量的线路也是常见的。

(3) 数据处理: 在 IPAC 中, 测量符合计数率随两个探测器之间的角度变化。数据用最小二乘法拟合, 并归一化, 得到  $W(\theta) = 1 + A_2^{c,sp} P_2(\cos\theta) + A_4^{c,sp} P_4(\cos\theta)$ ,  $A_2^{c,sp} = A_2 \overline{G_2(\infty)} Q_2$  和  $A_4 = A_4 \overline{G_4(\infty)} Q_4$ , 其中  $Q$  是几何因子, 可查表得到。当已知不扰动的  $A_k$  时, 可直接计算  $\overline{G_k(\infty)}$ 。不扰动的角关联可以通过测量强酸性不络合溶液中的放射性得到。当忽略  $A_4$  时, 方法可简化, 从各向异性度  $u$  得到  $\overline{G_2(\infty)}$ 。

在 TDPAC 中, 忽略  $A_4$ , 得到  $A_2 G_2(t) \approx$

$$R(t) = \frac{2 \left[ N(\pi) - N\left(\frac{\pi}{2}\right) \right]}{N(\pi) + 2N\left(\frac{\pi}{2}\right)}, \text{ 用四个探测器,}$$

则有  $A_2 G_2(t) = \frac{2}{3} \left[ \left( \frac{D_{13} D_{24}}{D_{14} D_{23}} \right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right]$ 。通过计算机程序<sup>[9][10]</sup>用最小二乘法拟合实验数据与校正时间分辨和频率分布以后的理论扰动函数  $G_k(t)$ , 从中得到  $\omega_1$ 、 $\omega_2$ 、 $\omega_3$ 、 $\delta$  等参数和各种位置扰动的可能性的最好拟合值。从计算  $\omega_2/\omega_1$  和  $\omega_1/\omega_0$  可得到不对称参数, 至测定电场梯度组分, 当  $\eta \leq 0.3$  时,  $\omega_0$  的误差较大。

**参 考 文 献**

(1) K. Nakai, *Hyperfine Interact.*, 21, 1 (1985).

- (2) A. Baudry, et al., Solid State Ionics, 9-12, 799 (1983).
- (3) H. Hahn, Z. Metallkd., 75, 407 (1984).
- (4) N. Coursol, et al., Nuclear Medicine and Biology Advance, V3, A. Raynaud(ed), Pergamon Press, 1983.
- (5) J. P. Adloff, Radiochim. Acta, 25, 57 (1978).
- (6) 倪新伯, 扰动角关联及其应用, 1985.
- (7) K. Siegbahn,  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$ -ray Spectroscopy, V2, 1965.
- (8) J. Krugers (ed), Instrumentation in Applied Nuclear Chemistry, Plenum Press, New York, 1973.
- (9) A. R. Arends, et al., Hyperfine Interact., 8, 191 (1980).
- (10) J. A. Martinez, Hyperfine Interact., 12, 279 (1982).
- (未完待续)