

# 用同步辐射进行核共振激发

焦 洪 震

(南京大学物理系)

## 一、引 言

近年来,同步辐射被广泛地应用于物理、化学、生物学等各个领域<sup>[1-3]</sup>。我国正在北京和合肥建造同步辐射加速器。高能所的同步辐射加速器BEPC计划于1988年出束。同步辐射同原子核相互作用的实验也引起了人们的注意<sup>[1,3-6,12]</sup>,其中的一个方面就是用同步辐射进行核共振激发。

在国际上,用同步辐射进行核共振激发是围绕用同步辐射源进行Mössbauer实验的探索而展开的。大家知道,常规的Mössbauer源是单色的,但是其亮度不够高。例如,目前所能得到的最强的Mössbauer源( $\approx 0.1\text{ci}/\text{mm}^2$ ),其亮度约 $2 \times 10^9$ 光子/秒·厘米<sup>2</sup>·球面度,而且非极化,准直性差,因此许多有意义的实验工作无法开展。而同步辐射具有亮度高,几乎100%极化,高度准直,脉冲化等特点。

同步辐射单色化所遇到的一个主要困难是,同步辐射同物质相互作用时,不仅同原子的核发生作用,也同核外电子发生作用。电子过程所产生的辐射对核共振激发的辐射

产生严重的干扰。虽然电子过程的截面比核共振过程的峰截面小得多,但电子过程作用的能量范围很宽。例如,对于带宽为1 eV的同步辐射束,电子过程将同该能带范围内的所有光子起作用,而核共振过程只对共振能级自然宽度范围内的光子起作用,对于<sup>57</sup>Fe只有 $4.67 \times 10^{-9}$  eV。幸而电子过程和核共振过程的作用时间是不同的。电子过程是瞬时的(约 $10^{-19}$ 秒),而核过程是延发的,同核能级的寿命有关。因此我们可以选用寿命比较长的核激发态。但是,另一方面,这种寿命选择又不是任意的,这可从共振核过程的截面同入射辐射的能量关系看出来。对于宽带源,共振吸收截面是能量的积分截面,并同能级宽度 $\Gamma$ 成正比。因此,为使核共振激发强度大,必须选择尽可能宽的核能级。根据测不准原理,能级宽度和能级寿命之间满足如下关系: $\Gamma = 1/\tau$ ,可见宽度大的核态,其寿命就短。由此可见,两者是矛盾的,为了用电子学方法将核过程和电子过程区分开来,又要有足够大的共振激发强度,只能在两者之间进行折衷。

从现有的核谱学知识知道,可供选择的余地并不大。最好的候选核只有<sup>57</sup>Fe和<sup>83</sup>Kr。

[2] Alfred R. Smith, IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. NS-28, No. 2, p.1876-1879

[3] J. R. Alonso, et al., IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. NS-26, No. 3, p.3003-3005, 1979

[4] J. Mougey, et al., Physics Letters, Vol. 105B, No. 1, p.21-29, 1981

[5] 岸田则生等,理化学研究所报告,第58卷,

第4,5合并号, p.77-91, 1982

[6] V. W. Steward, Proc. 8th Conf. on Cyclotrons and Their Applications, p. 2257-2261, 1978

[7] J. Alonso, et al., LBL-15147, 1983

[8] LBL, Accelerator and Fusion Research Division, Summary of Activities, 1983, LBL-18500, 1984

[9] J. M. Nitschke, LBL-17935, 1984

由于 $^{83}\text{Kr}$ 的材料科学知识极为贫乏,用这种材料制作单色器更为困难。而 $^{57}\text{Fe}$  14.4keV能级正好是常规Mössbauer谱学中用得最多的核能级;又有合适的寿命,便于用电子学技术;有足够大的核共振截面;含铁化合物的化学及结晶学知识比较丰富,便于制造大尺寸单晶体。因此,至今用同步辐射所进行的核共振激发探索都是用 $^{57}\text{Fe}$ 的14.4keV能级。但也存在一些严重问题, $^{57}\text{Fe}$ 天然丰度极低(2.2%);大部分高铁材料在室温下都是磁性的,核共振能级因超精细相互作用而分裂,冲淡了有效的共振激发强度。

## 二、可能的应用

在探索用同步辐射进行核共振激发的同时,对它可能的应用作了分析和预测<sup>[9]</sup>。这些可能的应用大致有如下几个方面:

### (一) Mössbauer效应

原则上讲,用同步辐射作Mössbauer源可应用于常规Mössbauer实验所应用的各个领域。但是,要用同步辐射源取代常规的放射源是不可能的,也是没有必要的。因为常规的放射源成本低,使用方便。因此,值得用同步辐射源进行的Mössbauer实验只是那些能利用同步辐射的独特特征,而用常规源无法进行,又能提供新的可能性的一些领域。

1. 进行极化Mössbauer实验。这样的实验也可用常规的源做,方法是从分裂源中过滤掉一些超精细线。但是,这样做的后果是强度有相当大的损失。“自由”极化源的可用性使这类实验变得更吸引人,并可同中子散射相竞争。

2. 利用脉冲束的Mössbauer实验。用Mössbauer效应测量处于亚稳、低位、光学激发态(典型寿命 $\sim 10^{-3}$ 秒)上离子的超精细结构,这一课题只在偶然的场合提到。这样的实验过去是不能做的,即使有可能用强光脉冲将很大分数的离子放入光学激发态,但是

它们很快就衰变到电子基态。为连续保持大分数离子处于激发态,所需功率太大,以致不容易供给。然而,如果使光脉冲化,以便与同步辐射同步地做光激发,那么,在激发离子衰变之前,就可以做Mössbauer实验。其它实验可根据固体被同步辐射脉冲本身的电子激发来进行。

3. 利用同步辐射进行高度准直性的实验。一些因立体角的影响而受到严重限制的Mössbauer实验,用同步辐射可以大为方便。一个这样的实验是引力红移的测量。这里,效应的大小正比于源和吸收体间的距离。在增大两者间的距离时,增加效应和减小立体角之间必须取某种折衷。对于100米的间距,现有同步辐射束等价于0.25Ci源的束,不需太大的费用就可以实现。用Wiggler使同步辐射在强度方面得到预期的改进,将使这些实验成为现实。引力和惯性质量间的当量,用常规Mössbauer实验已确定到 $\sim 10\%$ ,用这样的实验或许可以改进两个数量级。

4. 不能用放射源的Mössbauer实验。在少数场合,所研究能级的放射性母体不易得到或者由于明显的原因产生干涉线。前者如 $^{19}\text{F}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{60}\text{Ni}$ 、 $^{121}\text{Sb}$ 、 $^{157}\text{Gd}$ 和 $^{201}\text{Hg}$ ;后者如 $^{73}\text{Ge}$ 、 $^{181}\text{Ta}$ 和 $^{189}\text{Tm}$ 。对于多同位素的Mössbauer研究;对放射性Mössbauer吸收体的研究,用同步辐射也将更容易些。

### (二) 没有Mössbauer效应的核激发

在用同步辐射的Mössbauer实验中,核共振激发不仅由零声子过程产生(即Mössbauer效应),而且也由单声子和多声子过程产生。因为激发辐射的带宽比声子谱宽得多,所以它们也将导致核激发,这样的激发同Mössbauer吸收产生的核激发是无法分开的,所发射的次级辐射中只有f分(无反冲因子)是零声子过程产生的,从而冲淡了共振强度。

因为非无反冲跃迁的吸收线被声子谱不均匀地加宽,所以这种吸收不能提供超精细的信息。不过,这种效应可利用的优点是从激发态的进动速率推得超精细信息。这基本

上就是扰动角关联实验 (PAC) 和注入扰动角关联技术 (IMPACT) 之间的交叉。同步辐射激发实验将具有这两种老技术的优点, 即反冲撞击小, 所研究的核将不会被置换, 而 $\gamma$ 荧光各向异性的量将非常大。因此, 激发同步辐射被极化, 从而用时间积分或时间微分效应来探测进动。

另一种探测方法是“频闪观测器”技术。这里入射束以固定频率脉冲化, 改变外加磁场使核激发态的进动频率等于束脉冲的重复频率。因此, 所有的核都以相同的方式进动, 这对小的超精细扰动产生一个极高的灵敏度, 这使金属中乃特移动这样的测量更容易。

通过吸收光子和发射光子间的扰动角关联研究超精细相互作用将是非常有用的工具。因为它不受无反冲因子的限制, 就可以在高温下研究中能跃迁 (50-100keV), 以及研究液体的顺磁性, 核弛豫时间, 只要同步辐射激发出足够低位的核态和具有足够长的寿命, 以便在它衰变之前有可观的进动。

如果入射同步辐射束被单色化到 1 eV 带宽, 对于扰动角关联工作有兴趣的大多数核跃迁、核散射和电子散射之比只有大约 $10^{-6}$ 。因此, 要实现上述实验, 无论在探测器和单色器设计方面都需要有一个根本性的改进。

### (三)核Bragg散射

用同步辐射进行核Bragg散射研究是伴随从同步辐射束中过滤出Mössbauer辐射的问题开展的。以前, 这类研究工作也是用强放射源进行的<sup>[7-9]</sup>, 在这些研究中, 存在的一个最大问题也是强度问题。放射源在晶体Bragg反射所接受的立体角内, 单位时间只产生很少的光子计数。因此, 只能研究积分强度的行为, 所得的信息极受限制。同步辐射的高亮度、高准直性使这类实验工作产生了新的希望。

同步辐射的固有准直性使测量核和电子的Bragg散射间的干涉效应大为方便, 这允许直接测定X射线散射的相因子<sup>[13-16]</sup>。已经用

Mössbauer源做了若干这样的测量<sup>[13,14]</sup>, 但是它们是极其困难的, 用同步辐射源, 这个问题将得到改善。

同步辐射为研究Bragg散射的时间依赖关系实验提供了唯一的机会。Kagan等人观察了Mössbauer衍射的瞬时特征<sup>[17]</sup>, 特别是预言了它们同孤立核衍射的瞬时特征根本不同。以前对任何类型的辐射都没有观察到衍射的时间展开, 而同步辐射源正好适合于这些实验<sup>[8,10]</sup>。

### (四)X射线干涉量度学 (Interferometry)<sup>[18,20]</sup>

用同步辐射激发的核态是低位核态, 能量宽度 $10^{-6}$ eV到 $10^{-8}$ eV, 由这些核态发出的 $\gamma$ 量子仍有0.2到20米的相干长度。它可以用于一些由Bonse-Hart干涉量度学所研究的问题, 提供一种互补的技术, 特别是对于研究低能吸收边 $\leq 1$ keV更为有效。对于Bonse-Hart系统中的Bragg反射来说, 因其波长太长, 而同步辐射X射线干涉量度学正好适合于此类研究。

## 三、方法与现状

自从1974年S.R.Ruby提出用同步辐射进行核共振激发的设想以来, 科学家们根据核共振过程的一些性质<sup>[6]</sup>提出了各种单色化的方案, 这些方案可大致归纳如下:

(一)时间过滤技术<sup>[4]</sup>。R.L.Cohen等人用这种技术第一次在实验上观察到了用同步辐射激发的<sup>57</sup>Fe 14.4keV能级<sup>[10]</sup>。他们所用的实验装置如图1所示。实验是在斯坦福同步辐射实验室的SPEAR上做的。

同步辐射束经Si(220)沟道切割的单晶体预单色化, 然后投射到含<sup>57</sup>Fe的靶上(<sup>57</sup>Fe增丰到90.6%, 铝箔厚度 $1.85\text{mg}/\text{cm}^2$ ), 辐射被靶箔中的<sup>57</sup>Fe核吸收, 使激发的14keV能级以100ns的半寿命衰变, 先发射能量为7和13keV的内转换电子, 这些内转换电子进入一个有连续打拿极的导电板电子倍增器。倍

增器分为两级，并由两级间的栅极选通。倍增器输出脉冲经快速电荷灵敏前置放大器放大后，再进行延迟削波，输出一宽度为~50 ns的脉冲，然后送入选通甄别器。探测器和甄别器都有定时电路。在同步辐射脉冲到达探测器的时间里停止选通，经100ns后，接通探测器和甄别器，以使光电子、康普顿电子及其它低能二次电子有足够的时间消散。对于飞行时间长达100ns的低能电子，由栅极和电子倍增器入口的减速电势抑制。探测器和甄别器选通100ns后再断开，以等待下一个同步辐射脉冲。该装置测量结果见图2。

(二)用掠入射反射。J.P.Hannon和G.T.Trammell等人在1979年提出了用阻抗匹

配掠入射膜来实现光子的过滤<sup>[18]</sup>。最近又做了类似的实验<sup>[20]</sup>。

这种方法的基本原理是用类似光学中透镜增透膜的方法。它利用X射线从电子密度小的物质进入电子密度较大的物质时，折射率有一个小小的变化，约 $10^{-6}$ 数量级。当同步辐射以掠射角 $\phi$ 投射到某一镜面时，如果 $\phi = \phi_c$  ( $\phi_c$ 为临界角)，则将产生全反射，当 $\phi > \phi_c$ 时，反射减小，穿透深度增加。通过适当选择 $\phi$ 、涂层的材料及厚度，使离共振辐射通过涂层上、下表面所反射的辐射有相同的振幅，且位相差为 $\pi$ ，则反射消失（即“阻抗匹配”）。但是在近共振的辐射入射到同一涂层时，由于折射率强烈地改变，使阻抗失配，从而反射增强，以此来抑制非共振散射辐射，加强共振散射辐射，达到过滤的目的。

该小组用<sup>57</sup>Fe镜，Te薄膜涂层，经过四次反射，在10eV能宽范围内，共振光子数与非共振光子数之比为 $\sim 1.3 \times 10^3$  (信噪比)。这个小组认为，本方法同下述Bragg方法相比，最终的共振光子通量可能大2—3个数量级。

(三)用原子核的Bragg散射。采用这种方法的有苏联的一个小组和西德的一个小组。下面分别介绍这两个小组的结果。

1.苏联小组的实验装置如图3所示<sup>[6][10]</sup>。他们用二个放在色散位置上的硅单晶的(111)反射作预单色器，然后再用增丰的 $\alpha$ -<sup>57</sup>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>单晶作单色器（增丰后的<sup>57</sup>Fe丰度为85%，有镶嵌结构角 $\sim 30''$ ）。单晶体这样放置，使它正好产生纯的核Bragg散射，用多晶Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>作吸收体，普通的NaI(Tl)——光电倍增管系统作探测器，在(777)衍射峰上观察到运动吸收体和静止吸收的计数率比，测量共进行二次：第一次， $N_x/N_0 = 1.29 \pm 0.16$ ；第二次， $N_x/N_0 = 1.18 \pm 0.09$ ；对两组测量求和，得 $N_x/N_0 = 1.20 \pm 0.08$ 。这里 $N_x$ 为吸收体运动时所测得的计数率， $N_0$ 为吸收体静止时所测得的计数率。

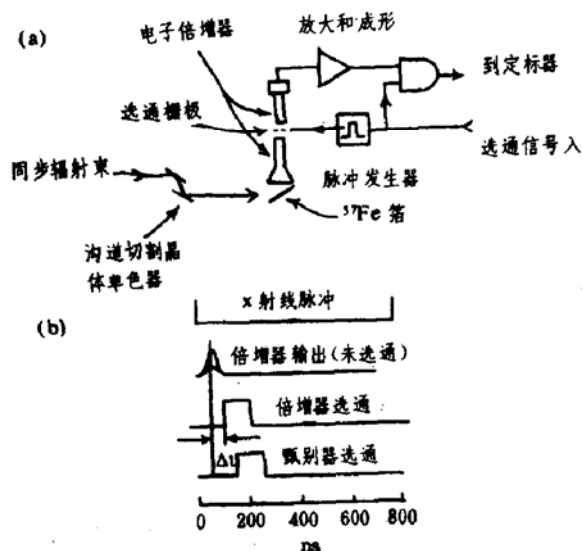


图1. (a)斯坦福存储环上所用的选通转换电子探测器简图 (b) a中所示的选通电路的定时图。定时期列以同步加速器的1.28MHz的频率重复。

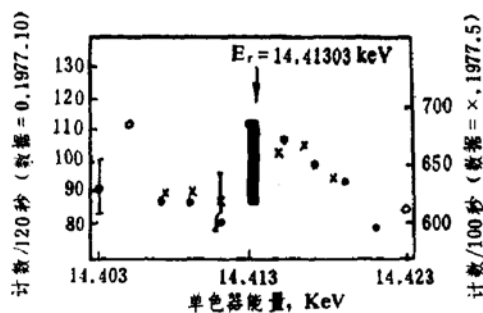


图2. X射线单色器扫描整个核激发所观察到的共振曲线。×为测量100秒的数据；○为测量120秒的数据。

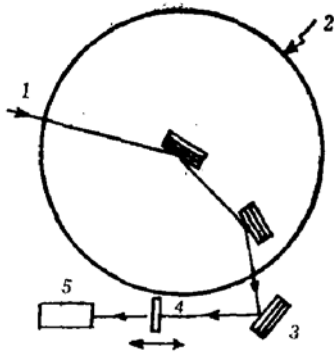


图3. 实验装置图。1.同步辐射束；2.单色器(放在色散位置上的二个Si单晶,(111)反射)；3.增丰的 $\alpha$ - $^{57}\text{Fe}_2\text{O}_3$ 单晶体；4.多晶赤铁矿吸收体( $10\text{mg}/\text{cm}^2$ )；5.闪烁探测器, NaI(Tl)加 $\Phi\text{ЭY}$ -85光电倍增管。

除测量强度外,他们用一套分辨时间为 $6.9\text{ns}$ 的快慢符合谱仪,测量了共振 $\gamma$ 辐射的瞬时分布,结果见图4。

由上可见,该小组用这种装置从连续的同步辐射束中获得了一束Mössbauer  $\gamma$ 射线,其强度为同步辐射总通量的 $10^{-13}$ 。

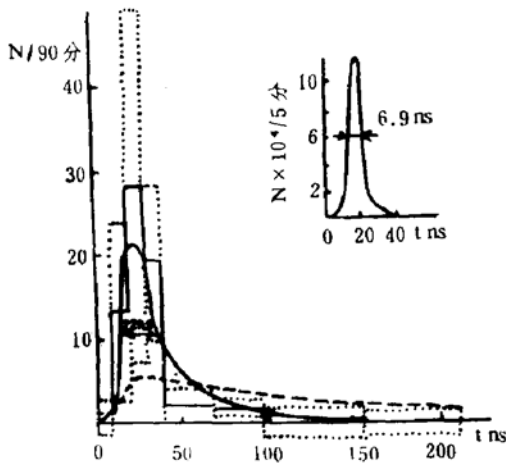


图4. 由赤铁矿单晶所衍射的共振 $\gamma$ 射线的时  
间分布。实线为对非指数衰变所作的  
计算(对6个自由度,  $\chi^2=7$ )；虚线为  
对孤立 $^{57}\text{Fe}$ 核,指数衰变所作的计算  
(对6个自由度,  $\chi^2=14.55$ )；图中的  
点表示系统测量误差。右上角图表示  
激发同步辐射脉冲。

2.西德小组1985年在汉堡DORIS存储环上用图5所示的实验装置得到了至今最好的结果<sup>[11]</sup>。他们用两个锗单晶的Bragg衍射作

预单色器,锗单晶垂直(111)方向切割。用微机控制,使辐射加热的影响减到最小,并抑制 $14.4\text{keV}$ 的谐波。Kr包用于测量期间的能量监测。狭缝后强度为 $(3-6) \times 10^{10}$ 光子/秒。Bragg单色器由两个 $15\mu\text{m}$ 厚的YIG单晶膜构成。YIG用增丰到88%的 $^{57}\text{Fe}$ 膜外延生长在直径 $30\text{mm}$ 的轧镁石榴石(GGG)单晶的{100}面上。探测系统用高纯锗(分辨率约 $1\text{keV}$ )和常规的快慢符合系统。快慢符合是在 $14.4\text{keV}$ 和DORIS束触发器之间进行。

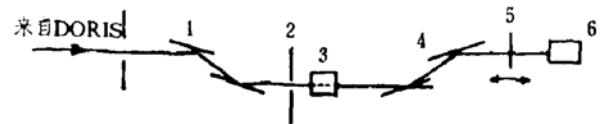


图5. 实验装置简图。1.预单色器；2.狭缝；3.Kr包；4.核Bragg单色器；5.共振吸收体；6.Ge探测器。

该小组用上述装置获得了一个 $1\text{Hz}$ 的Mössbauer源,测得了一个不锈钢吸收体的Mössbauer谱。根据现有资料,这是用同步辐射测得的第一个Mössbauer谱,见图6。图中出现了两个吸收峰,它对应于YIG单晶的两个不同的四面体d位置所产生的共振。

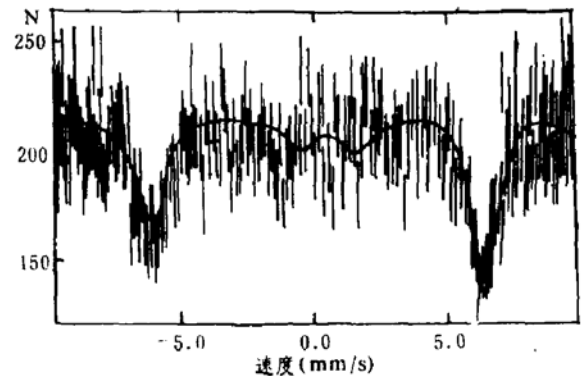


图6. 在两个YIG单晶后,用不锈钢吸收体( $1\text{mg}^{57}\text{Fe}/\text{cm}^2$ )所测得的Mössbauer谱。实线是用YIG的已知超精细参数和核衍射动力学理论进行计算的结果。

文章声称,通过改进YIG的质量,一个 $20\text{Hz}$ 的源是可以实现的,更大的改进要等待新设计的装有Wiggler或Undulator的存储环的运行。

## 四、结论

用同步辐射进行Mössbauer实验和核Bragg实验,并使之成为固体、材料、生物及其它科学领域的工具,这是十分困难的。在逐步的探索过程中也还会遇到新的未曾估计到的困难。但是,人们相信,这个目标是一定能够实现的,而且已找到了一些克服这些困难的方法。

当前,人们正期待两个方面取得重大突破:一是通过安装Wiggler或Undulator使同步辐射束的通量及共振量子的含量有大幅度增长;二是制造出完美性好的单晶,改进现有单色器,以提供强的、高度单色化的有用束。后者对材料科学无疑也是一个新的挑战。

本调研是由高能所沈鼎昌先生建议,经于祖荣先生介绍而进行的。南京大学物理系、核物理教研室在时间的安排上给予了充分的支持,在此谨致谢意。

## 参 考 文 献

1. Synchrotron Radiation Research ed. H. Winick and S. Doniach (Plenum Press, New York 1980)
2. Topics in Current Physics Synchrotron Radiation Techniques and Applications editor, C. Kunz(Springer Verlag, Berlin, 1979)
3. G.N. Kulipanov and A.N. Skrinsky, Sov. Phys. Uspekhi 122(1977)639
4. S.L. Ruby, J. de Phys. C6(1974)209
5. G. T. Trammell et al, Workshop on New Directions in Mössbauer Spectroscopy 1977, edited by G. T. Perlow AIP Conf. Proc. no 38 (American Institute of Physics, New York, 1977)p46;
6. G. T. Trammell and J. P. Hannon, Phys. Rev. B18(1978)165
7. A. N. Artemev et al, Nucl. Instr. Meth. 152(1978)235
8. U. Van Burek et al, J. Phys. C13 (1980)4511;
9. G. V. Smirnov and A. I. Chumakov, Sov. Phys. JETP vol 62 (1985)673
10. H. Winkler et al, Z. Phys. B49(1983) 331
11. R. L. Cohen, Synchrotron Radiation Research ed. H. Winick and S. Doniach(Plenum Press, New York 1980)p647
12. A. I. Chechin et al, JETP Lett. 37 (1983)633
13. E. Gerdau and R. Ruffer et al, Phys. Rev. Lett. 54(1985)835
14. R. L. Cohen et al, Discussion Panel in AIP Conf. Proc. 38 p140
15. P. J. Black and I. P. Duerdath Proc. Phys. Soc. (London) 84 (1964)169
16. F. Parak, R. L. Mössbauer et al, Z. Phys. 244 (1971) 456
17. F. Parak, R. L. Mössbauer et al, J. Phys. C6(1976)703
18. P. J. Black, G. Longworth et al, Proc. Phys. Soc. (London) 83 (1964) 925
19. Yu Kagan, A. M. Afanas'ev and V. G. Kohn, Phys. Lett. 68A (1978) 339;
20. Yu Kagan, A. M. Afanas'ev and V. G. Kohn, J. Phys. C12 (1979) 615
21. J. P. Hannon and G. T. Trammell et al, Phys. Rev. Lett. 43 (1979) 636
22. R. L. Cohen et al, Phys. Rev. Lett. 41 (1978)381
23. J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Mueller, E. Gerdau et al, Phys. Rev. B32 (1985) 6374