穆斯堡尔效应

MaskedName*

北京大学物理学院 学号: StudentID (实验日期: 2024 年 10 月 31 日)

固体中的原子核在发射或者吸收 γ 射线的时候有一定的概率不会发生核反冲,这就是穆斯堡尔效应。通过基于 Geant4 开发的 mossbSim 软件,我们能对穆斯堡尔效应进行模拟。在本实验中,我们模拟了探测器厚度、源与样品距离等参数对穆斯堡尔谱的影响,并通过对穆斯堡尔谱的分析,测量了 57 Fe 核能级的塞曼分裂、同质异能移位和电四极分裂等超精细结构。此外,我们还使用专业软件模拟了 12 居里 57 Co 核素对人体的辐射大小。

关键词:穆斯堡尔效应,穆斯堡尔谱,超精细结构,蒙特卡罗模拟

I. 引言

因为 γ 射线的能量较高,所以我们会观察到当 γ 射线和自由原子核相互作用的时候,会有显著的反冲,而这又会使得 γ 射线能量相对于核能级差出现移动。但是在 1957 年,还是博士生的穆斯堡尔在实验室中发现,固体中的 ¹⁹¹Ir 核在发射或者吸收 γ 射线的时候有一定的概率不会发生核反冲,即穆斯堡尔效应。该工作在 1958 年发表,在短短的三年后,即 1961 年,穆斯堡尔就获得了诺贝尔物理学奖。

穆斯堡尔谱拥有非常窄的线宽和非常高的分辨率,在测量核能级的超精细结构、确定核磁矩、评估核激发态的寿命、以及探测固体内部的电场和磁场强度方面发挥着重要作用。此外,穆斯堡尔谱还广泛应用于固体晶格振动的研究。这一技术已成为化学、磁学、固体物理学、生物学和冶金学等多个学科领域内不可或缺的研究工具。

穆斯堡尔效应的发现引领了一系列重要实验,其中包括著名的 Pound-Rebka 实验。该实验在 1959 年利用位于哈佛 Jefferson 实验室楼顶和地面的 γ 射线发射和吸收体,精确测量了光子的引力 红移现象,证实了相对论的预言 [1]。通过穆斯堡尔谱,科学家们能够深入探究原子核的超精细结构。在本实验中,我们采用了多普勒效应来微调入射的无反冲 γ 光子的能量,从而精确分辨不同原子核能级的超精细结构。通过这种方法,我们能够研究在不同实验条件下穆斯堡尔谱的差异。

II. 理论

A. 穆斯堡尔效应原理

一般来说,对于 γ 射线的吸收和发射过程,其谱线是洛伦兹线型,谱线强度 I 和光子能量 E 之间的关系为

$$I(E) \propto \frac{1}{(E - E_0)^2 + \frac{\hbar^2}{4\tau^2}}.$$

^{*} MyMail@stu.pku.edu.cn; Tel

在自由电子核发出 γ 光子的过程中,由于核的反冲,发出光子的能量会发生变化,由动量守恒得到核的反冲能为

$$E_R = \frac{P_\gamma^2}{2m_N} \approx \frac{E_0^2}{2m_N c^2},$$

其中 P_{γ} 、 E_0^2 为出射光子的动量和能量, m_N 为核的质量。而由能量守恒,入射/出射光子的 E_0 会变为 $E_0 \pm E_R$ 。对于 ⁵⁷Fe 的 $E_0 = 14.4$ keV 激发态而言, $\tau \approx 0.14$ μ s,对应 $\Gamma \approx 4.9 \times 10^{-9}$ eV 的尖锐谱线。而反冲给出的谱线移动 $E_R \approx 2 \times 10^{-3}$ eV $\gg \Gamma$,因此 $E_0 \pm E_R$ 两条发射和吸收谱线会发生分离,导致无法形成共振吸收。

室温下,热运动引起的多普勒效应导致谱线展宽,从而使发射和吸收谱线发生重叠,进而发生共振吸收。但是由于多普勒展宽的效果,即使忽略核反冲,有效吸收截面也要减小一个因子 $\Gamma/D_T \approx 2.5 \times 10^{-7}$ 。因此仅仅依靠热运动的多普勒展宽是难以观察到共振吸收的。

但是,穆斯堡尔发现: 当发射或者接受 γ 射线的核被嵌在固体中时,出现无反冲 γ 射线发射或者共振吸收的概率是相当大的。而对无反冲发射常见的解释是,当核被嵌在固体中时,固体与核成为一个整体,上式的 m_N 应该用整个固体的质量代替,反冲能与自然线宽相比微不足道,完全可以认为就是 0。但是这样的说法是没有办法解释为什么不是每一次发射 γ 光子都是无反冲的这一实验现象。实际上穆斯堡尔效应为一个量子效应,我们必须用量子力学的方法来描述这一过程。

记发射 γ 光子前后,包括我们所考察的衰变核 A 在内的所有固体的状态为 Ψ_i 和 Ψ_f 。由于发射 γ 光子这一过程中,我们可以认为 γ 光子与原子核 A 的作用是瞬时的,而瞬时的相互作用能够造成有限的影响,说明瞬时的相互作用趋于无穷大。因此我们可以忽略与发射 γ 光子无关的,固体内部其他粒子相互作用的哈密顿量,或者说,我们将核 A 看作自由的原子核。这样,发射一个 γ 光子对固体的影响仅仅限于:发射光子的那个核得到了一个动量 P_γ ,即

$$\Psi_f = e^{i\mathbf{k}_{\gamma} \cdot \mathbf{R}_A} \Psi_i,$$

其中 \mathbf{R}_A 是原子核 A 的位置, \mathbf{k}_{γ} 是出射 γ 光子的波矢。这样我们就可以计算发射一个 γ 光子后固体系统的平均能量变化为

$$\begin{split} \langle \Delta E \rangle &= \langle \Psi_f | \hat{H}_0 | \Psi_f \rangle - \langle \Psi_i | \hat{H}_0 | \Psi_i \rangle \\ &= \langle \Psi_i | e^{-i \mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{R}_A} \hat{H}_0 e^{i \mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{R}_A} | \Psi_f \rangle - \langle \Psi_i | \hat{H}_0 | \Psi_i \rangle. \end{split}$$

其中 \hat{H}_0 是与 γ 光子发射无关,即固体本身的哈密顿量。若晶体相对于观察者静止,可以计算得到

$$\langle \Delta E \rangle = \frac{\hbar^2 k_\gamma^2}{2m_A} = E_R.$$

这表明,即使核被嵌在晶体中,发射一个 γ 光子传递的反冲能和核是自由时完全一样。

然而,测定固体的吸收、发射谱,本质上正是对固体能量的观测;这一观测导致固体波函数坍缩至某一能量本征态,其中有一定概率回到初态,此即对应无反冲情形。无反冲分数 f 可由终态与初态的交叠加以刻画:

$$f = |\langle \Psi_f | \Psi_i \rangle|^2$$
.

这就是穆斯堡尔效应的基本图像。

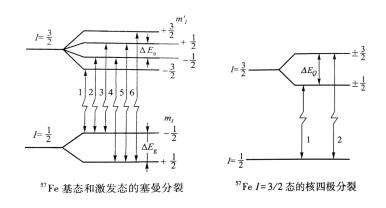


图 1. ⁵⁷Fe 超精细相互作用导致的能级分裂示意图

B. 超精细相互作用

因为穆斯堡尔谱十分尖锐,而且从源发出的 γ 射线相对于吸收体的能量移动能够到达十分高的精度,因此其特别适合研究超精细相互作用,超精细相互作用主要有如下三种:

1. **核塞曼分裂**:原子核的磁偶极矩 μ 和原子核处的磁场 B 会发生磁偶极相互作用,从而导致塞曼分裂,相邻能级之间的间距为

$$\Delta E = g_N \mu_N B$$
.

其中 g_N 为原子核的郎德因子, $\mu_N = e\hbar/2m_p \ (m_p$ 是质子质量)是核磁子。对于 57 Fe 而言,如图 1 所示,塞曼效应会导致六条相近的谱线。

2. **电四极矩分裂**:由于核电荷的分布不是球形对称的,在电场梯度的作用下,核能级会移动并且分裂成不同能级,这就是电四极矩分裂。四极分裂后,激发态两个能级之间的能级差为

$$\Delta E = \frac{e^2 Q \cdot q}{2}.$$

其中 eq 对应电场梯度主分量,eQ 对应电四极矩主分量。对于 $^{57}\mathrm{Fe}$ 而言,如图 1 所示,电四极矩分裂会导致两条谱线。

3. 同质异能移位:由于原子核具有一定的体积,核外的 s 电子在核内会有一定的概率分布,又 因为核在激发的时候半径会发生变化,所以会导致能量发生变化,这就是同质异能移位。放射源核 吸收体通常都会有大小不同的同质异能移位,因此实际讨论以及测量的同质异能移位为不同原子核 之间的差值。

III. 实验内容

A. 实验装置

考虑到放射性源的限制,本次实验通过计算机模拟的方式进行。我们使用了基于 Geant4 软件包开发的 mossbSim 软件,专门用于模拟穆斯堡尔效应。通过该软件,我们对探测器的不同厚度、源与样品之间的不同距离,以及 α -Fe 和硝普酸钠等不同样品进行了模拟计算。在模拟过程中,我们让穆斯堡尔源以 10 Hz 的频率进行往返匀加速运动,模拟电磁驱动的效果,并通过多普勒效应实现 γ 射线能量的周期性和线性调制。图 2 是穆斯堡尔效应实验的装置示意图。

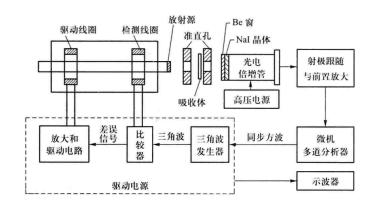


图 2. 穆斯堡尔效应实验装置示意图

B. 实验过程

首先进行穆斯堡尔效应实验,按照实验台或者计算机的桌面上《mossbSim 操作演示》的文件说明,实现探测器厚度分别为 0.13~mm 和 13~mm、源与样品的距离分别为 5~mm 和 100~mm 的 α -Fe样品的 Geant4 模拟。样品换为硝普酸钠,厚度/距离 =0.13~mm/100~mm,重复实验。最后通过测量得到的谱计算道增益 K,零速度对应的道址, 57 Fe 基态和第一激发态的郎德 g 因子和核磁矩大小,硝普酸钠的同质异能移位和四级裂距。

随后进行剂量实验。根据电脑 Dose 目录下"点源吸收剂量计算 v0"说明,利用专业模型,即目录 ICRP145_HumanPhantomsAir 下的 bin 的可执行程序,模拟 1 居里 $^{57}_{27}$ Co 核素放在人体右侧 1 m 处的吸收剂量。

IV. 实验结果与分析

A. 穆斯堡尔效应实验

首先取探测器 NaI 样品的厚度为 0.13 mm,源与样品的距离为 100 mm,得到的 57 Co 放射源能谱如所示。其中 X 为道地址数,Y 为光子计数。红色竖线为所设置的 14.4 keV 的 γ 射线产生的信号峰左、右两侧的阈值。从左往右四个能峰分别对应 6.4 keV 的 Fe 的 X 射线、14.4 keV 的 γ 射线、123keV 和 137keV 的 γ 射线在 NaI 中 I 元素产生的 X 射线逃逸后剩余能量产生的信号峰、123keV 和 137keV 的 γ 射线全能峰 [3]。

根据图 3 所示的 14.4 keV 峰的上下阈(红色线),可以在这个上、下阈之间观察信号对应的补偿速度的分布,也就是穆斯堡尔谱。图 4 是我们在探测器厚度为 0.13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的 α -Fe 样品穆斯堡尔谱。在模拟程序中,X 轴(道地址)与补偿速度 v 之间存在一个预定义的转换关系。具体来说,mossbSim 软件中已经设定好,第 1 道对应 +v,第 256 道对应 -v,而第 512 道再次对应 +v。因此,如果设定的速度变化范围覆盖了六个共振位置,那么在每个模拟周期中,将会经历两次共振,相应地,模拟得到的 α -Fe 的穆斯堡尔谱图将展现出 12 个共振位置,并且这些位置关于第 256 道对称分布。

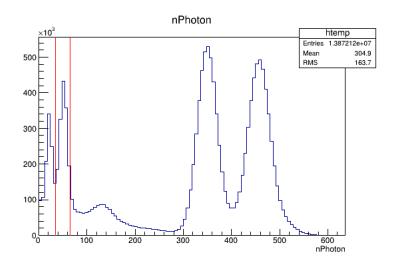


图 3. NaI 探测器厚度为 0.13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的 $^{57}\mathrm{Co}$ 能谱

1. 计算道增益 K

通过 Origin 的 "Multiple Peak Fit" 功能,我们可以从图 4 中找到六个共振位置的道址,如表 I 所示。注意到右侧峰道地址随序号递增,而左侧锋随序号递减,这是因为它们分别对应着一个速度 周期中的上升和下降区间。我们已知 α -Fe 的 $v_6-v_1=10.656$ mm/s,于是道增益 K 为

$$K = \frac{10.656}{|v_6 - v_1|_{\alpha - \mathrm{Fe}}} \ \mathrm{mm/s} \approx 6.25 \times 10^{-2} \ \mathrm{mm/s}.$$

其中 $|v_6-v_1|_{\alpha-\mathrm{Fe}}$ 为左右道址的结果平均得到,下面计算也类似。

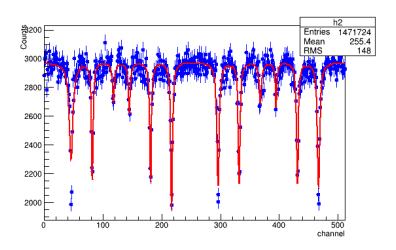


图 4. NaI 探测器厚度为 0.13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的 α -Fe 样品穆斯堡尔谱

表 I. α-Fe 样品穆斯堡尔谱的峰值道地址(由图 4 拟合得到)

序号	1	2	3	4	5	6
右侧峰道地址 v_R	297	332	368	395	431	467
左侧峰道地址 v_L	217	182	145	118	82	46

2. 零速度对应的道址

接下来我们计算零速度对应的道址。对于我们所用的源, α -Fe 六线谱的重心应该在 -0.185 mm/s 的位置(它相当于 α -Fe 与 Pd 衬底的 57 Co 源之间的同质异能移位),可根据下面的公式定出 α -Fe 谱的重心位置

$$v_{c,\alpha-\text{Fe}} = \frac{v_1 + v_2 + v_5 + v_6}{4} = \begin{cases} 381.75, & \text{Afgl}, \\ 131.75, & \text{Afgl}. \end{cases}$$

于是零速度对应的道址为

$$v_{0,\alpha-\text{Fe}} = v_c \pm \frac{-0.185 \text{ mm/s}}{K} = \begin{cases} 384.7, & \text{fig.}, \\ 128.8, & \text{fig.}. \end{cases}$$

我们可以计算左右侧的零速度道址间隔为 $384.7-128.8=255.9\approx256$,这表明我们的速度周期和道址是匹配的。反之,在确定道址和速度的匹配关系的前提下,我们也可以通过这一结果验证 -0.185 mm/s 这个数值的可靠性。

3. 57 Fe 基态和第一激发态的郎德 g 因子和核磁矩大小

已知 α -Fe 的内磁场为 $B_{\text{int}} = 33.3 \text{ T}$ 。对 14.4 keV 的谱线, $E_0/c = 4.80766 \times 10^{-8} \text{ eV} \cdot \text{s} \cdot \text{mm}^{-1}$,比较前述塞曼分裂的能谱图图 1,我们可以通过下面公式计算得到塞曼分裂的裂距:

$$\Delta E_g = \frac{|v_4 - v_2| + |v_5 - v_3|}{2} \frac{KE_0}{c} = 1.900 \times 10^{-7} \text{ eV},$$

$$\Delta E_e = \frac{|v_3 - v_2| + |v_5 - v_4|}{2} \frac{KE_0}{c} = 1.089 \times 10^{-7} \text{ eV}.$$

上面的结果都是对左侧和右侧进行平均后得到的结果。由 $\Delta = g\mu_N B$,以及 $\mu_N = 3.152451 \times 10^{-8} \text{ eV/T}$,我们可以计算得到 g 因子和核磁矩大小:

$$g_g = 0.183$$
, $\mu_g = 5.76 \times 10^{-9} \text{ eV/T}$,
 $q_e = 0.105$, $\mu_e = 3.30 \times 10^{-9} \text{ eV/T}$.

4. 硝普酸钠的同质异能移位和四级裂距

将样品换做硝普酸钠,保持探测器厚度为 0.13 mm,源与样品的距离为 100 mm,重复上述实验,得到的穆斯堡尔谱如图 5 所示。通过拟合得到的峰值道址如表 II 所示。

表 II. 硝普酸钠样品穆斯堡尔谱的峰值道地址(由图 5 拟合得到)

序号	1	2
右侧峰道地址 v_R		
左侧峰道地址 v_L	177	97

硝普酸钠相对于 α -Fe 的重心偏移量为

$$\Delta v = \left| \left(\frac{v_1 + v_2}{2} \right)_{\text{硝普酸钠}} - v_{c,\alpha-\text{Fe}} \right| = 5.00.$$

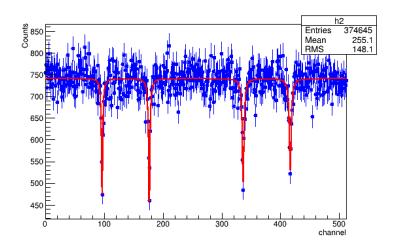


图 5. NaI 探测器厚度为 0.13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的硝普酸钠样品穆斯堡尔谱

于是硝普酸钠的同质异能移位为

$$\Delta E = \Delta v \frac{KE_0}{c} = 1.50 \times 10^{-8} \text{ eV}.$$

同样,对于硝普酸钠样品,对比上面电四极矩分裂的能谱图,我们可以计算得到电四极矩分裂的裂距:

$$\Delta E_q = |v_2 - v_1| \frac{KE_0}{c} = 2.40 \times 10^{-7} \text{ eV}.$$

这就是 57Fe 第一激发态的电四极分裂裂距。

5. 对不同参数的讨论

对 α -Fe 样品,除了 0.13 mm 的探测器厚度和 100 mm 的源与样品距离,我们还进行了探测器厚度为 13 mm、源与样品距离为 100 mm 的实验以及探测器厚度为 0.13 mm、源与样品距离为 5 mm 的实验。实验结果如图 6 至图 9 所示。

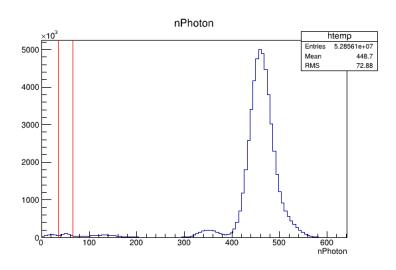


图 6. 探测器厚度为 13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的 ^{57}Co 能谱

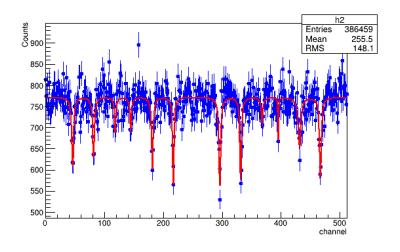


图 7. 探测器厚度为 13 mm、源与样品距离为 100 mm 下测量得到的 α -Fe 样品穆斯堡尔谱

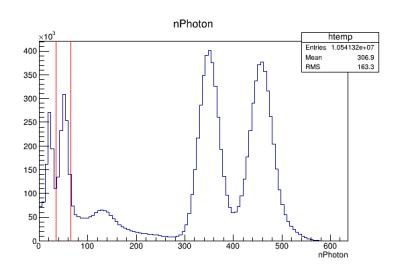


图 8. 探测器厚度为 $0.13~\mathrm{mm}$ 、源与样品距离为 $5~\mathrm{mm}$ 下测量得到的 $^{57}\mathrm{Co}$ 能谱

从图 3 和图 6 可以看到,选用较薄的探测器可以压低放射源发射的 123 keV 和 137 keV 的 γ 射线对实验结果可能产生的影响,让更多的信号集中在 14.4 keV 的 γ 射线实际占总的辐射比例是相对比较小的,如果用较薄的探测器进行探测,那么相对来说能量更高、穿透能力更强的 123 keV 和 137 keV 射线在探测器上的沉积能量就会比较小。反之,若选用较厚的探测器(这里我们选了 13 mm 作为对比),就会导致 123 keV 和 137 keV 的射线在探测器上的沉积能量比较大,从而降低 14.4 keV 的 γ 射线的信噪比。

除了探测器厚度之外,放射源与样品的距离(D)也是影响探测结果的重要因素。对比图 8、图 9和图 8、图 9,我们可以看到,在不同的源与样品距离下, γ 射线的能谱图实际差异并不会特别大,但是源与样品的距离变近会导致穆斯堡尔谱的分辨率变差。对这一现象我们做出下面的简要分析:D 变小时,入射到样品的 γ 射线入射角更大,大角度入射的比例增加。当 D=5 mm 时,入射角较小和较大的射线不能同时满足共振条件,因此穆斯堡尔谱分辨率较差。而当 D=100 mm 时,入射角度较小,样品上有更大的区域能够发生吸收共振,从而探测到的峰会更加尖锐。

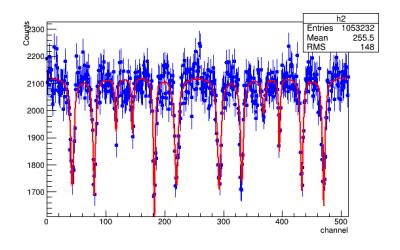


图 9. 探测器厚度为 $0.13~\mathrm{mm}$ 、源与样品距离为 $5~\mathrm{mm}$ 下测量得到的 α -Fe 样品穆斯堡尔谱

B. 剂量实验

通过专业模型, 我们模拟了 1 居里 $^{57}_{27}$ Co 核素放在人体右侧 1 m 处的吸收剂量。部分数据如图 10 所示。我们通过下面公式可以计算一秒人体吸收的辐射剂量(单位: Gy, 1 Gy=1 J/kg):

$$D = 3.7 \times 10^{10} \times \frac{1}{M} \sum_{i = \text{Organ ID}} \text{Organ Mass}_i \times \text{Dose}_i = 8.9 \times 10^{-8} \text{ Gy}.$$

其中 M 是人体质量, $M = \sum_{i} \text{Organ Mass}$.

Run #0 / Ni	umber of event proc	essed : 1000000	
rgan ID	Organ Mass (g)	Dose (Gy/source)	Relative Error
100	8.683	1.950e-19	0.951
200	8.683	6.763e-19	0.409
300	0.022	0.000e+00	1.000
301	0.090	0.000e+00	1.000
302	0.028	0.000e+00	1.000
303	11.291	2.095e-18	0.483
400	0.141	0.000e+00	1.000
401	0.390	0.000e+00	1.000
402	0.098	0.000e+00	1.000
403	0.049	0.000e+00	1.000
404	0.098	0.000e+00	1.00
405	28.808	2.374e-18	0.359
500	0.086	0.000e+00	1.000
501	0.024	0.000e+00	1.000
600	0.023	0.000e+00	1.000
700	10.364	2.080e-18	0.68
800	0.025	0.000e+00	1.00
801	0.031	0.000e+00	1.00
802	0.052	0.000e+00	1.00
803	0.130	0.000e+00	1.00
804	0.026	0.000e+00	1.000
805	0.052	0.000e+00	1.000
806	0.052	0.000e+00	1.000
807	0.053	0.000e+00	1.000
808	2.777	1.843e-19	1.000
900	1.504	0.000e+00	1.000
910	6.944	2.298e-19	0.785
1000	193.197	1.962e-18	0.111

图 10. $^{57}_{27}$ Co 核素放在人体右侧 1 m 处人体受到的辐射剂量,organ ID 是身体不同部位器官的编号

计算完辐射剂量后,我们用下面公式计算剂量当量:H=DQN(单位:Sv, 1 Sv=1 J/kg),其中 D 为吸收剂量,Q 为品质因数(x, γ , β 的 Q 通常为 1; 中子,质子,离子、 α 射线为 25),N=1(辐照条件的改变的修正)。于是我们得到人体在一小时的辐射剂量当量为 3.2×10^{-4} Sv。如果允许年剂量当量 H 是 20 mSv,可知人一年内最多在这样的环境中工作 62 小时。

V. 结论

本实验通过 mossbSim 软件对穆斯堡尔效应进行模拟,以 ⁵⁷Co 作为 γ 射线源,利用多普勒效应 微调制光子能量,获得了 α -Fe 和硝酸普纳样品的穆斯堡尔谱。在此基础上,我们通过分析穆斯堡尔谱 计算了道增益 K 和零速度对应的道址,并利用已经校准的谱研究 ⁵⁷Fe 核的超精细结构。通过模拟计算,我们得到了 α -Fe 的同质异能移位和四级裂距,分别为 1.50×10^{-8} eV 和 2.403×10^{-7} eV。我们还计算了 ⁵⁷Fe 基态和第一激发态的郎德 g 因子和核磁矩大小,分别为 $g_g=0.183$ 、 $\mu_g=5.76\times10^{-9}$ eV/T 和 $g_e=0.105$ 、 $\mu_e=3.30\times10^{-9}$ eV/T。

最后,我们讨论了探测器厚度和源与样品距离对实验结果的影响,以及通过专业模型模拟了 ⁵⁷Co 对人体的辐射剂量。计算表明人一年内最多在一居里 ⁵⁷Co 辐射的环境中工作 62 小时。

VI. 致谢

感谢王思广老师在实验中的细致指导和耐心帮助。

- [1] Pound R.V. Rebka Jr G.A. Gravitational red-shift in nuclear resonance[J]. Physical Review Letters, 1959, 3(9): 439.
- [2] 吴思诚, 荀坤. 近代物理实验 (第四版)[M]. 北京: 高等教育出版社, 2015.
- [3] 王思广,罗棱尹,贾春燕. 使用 mossbSim 软件模拟穆斯堡尔实验 [J]. 物理实验, 2021, 41(01):15-21. DOI:10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.01.003.

附录 A: 思考题

1. 在发射(吸收) γ 射线后,核的质量实际上会有所下降(上升),这会带来什么后果,为什么仍然能够观察 到 γ 射线的共振吸收呢?

核质量的改变会导致穆斯堡尔峰的移动。而由于我们用多普勒效应进行调制 γ 光子能量的范围足够大,因此我们仍然可以在这个范围内看到穆斯堡尔峰的共振吸收。

2. 请解释为什么源或吸收体较厚的时候会导致谱的展宽?

实验报告中对此现象做过粗略的解释,图 6 中的较宽谱主要是因为 123 keV 和 137 keV 射线在探测器上的沉积能量比较大。同时如果源的厚度较大的话,从中放出的 γ 射线可能会受到一定的散射,这也会导致谱的展宽。

3. 在计算 α -Fe 的重心位置时为何没有用到 v_3 和 v_4 ?

这是因为 v_3 和 v_4 处的共振峰相对比较小,展宽相对于其他峰更大,如果用这两个峰进行计算,可能会导致比较大的误差。