

Выбор источника гамма-излучения при фазовом анализе вещества методом ядерного гамма-резонанса

С. В. СНИЦЫН

Рассмотрено влияние нерезонансного ослабления резонансных γ -квантов матрицей источника γ -излучения на форму монолинии на мессбауэровском спектре. Указано, что данное влияние приводит к увеличению погрешности фазового анализа вещества в ядерной γ -резонансной спектроскопии. Определен критерий пригодности источника γ -излучения к применению в фазовом анализе вещества указанным методом. Показана актуальность проблемы для наиболее широко применяемых мессбауэровских изотопов.

Согласно [1] изменение плотности радионуклида по поверхности источника γ -излучения может приводить к изменению формы монолинии на мессбауэровском спектре резонансного γ -излучения, регистрируемого в геометрии поглощения. При этом форма монолинии резонансного поглощения становится отличной от лоренцевой и ее математическое описание усложняется, что в свою очередь обуславливает увеличение погрешности фазового анализа вещества методом ядерного γ -резонанса. Однако имеется другая не менее важная причина изменения формы монолинии. В [2] показано, что при наличии резонансного ослабления нерезонансного ослабление матрицей источника потока резонансных γ -квантов также вызывает дополнительное изменение формы монолинии резонансного поглощения. Поэтому на практике влияние указанного нерезонансного ослабления на форму монолинии резонансного поглощения следует минимизировать так, чтобы в пределах погрешности измерения им можно было пренебречь. Учитывая изложенное выше, определим критерий, по которому можно принять, что нерезонансное ослабление резонансных γ -квантов матрицей источника не влияет на форму монолинии резонансного поглощения и данный источник γ -излучения пригоден для применения в фазовом анализе вещества методом ядерного гамма-резонанса.

Указанное влияние можно определить по изменению параметров монолинии резонансного поглощения. В связи с этим проведем расчет площади S , амплитуды A и ширины W монолинии резонансного поглощения при одновременном учете резонансного и нерезонансного ослабления резонансных γ -квантов матрицей источника γ -излучения. Под A , S и W будем понимать соответственно следующие величины на мессбауэровском спектре резонансных γ -квантов, получаемом в геометрии поглощения:

$$A = N_{\infty} - N_0; S = \frac{4}{n_0} \sum_{i=1}^{n_c} (N_{\infty} - N_i); W = \frac{S}{\pi A} W_0, \quad (1)$$

где N_{∞} — фон на спектре; N_0 и N_i — числа импульсов на спектре соответственно при максимальном резонансном поглощении и в i -м канале; n_c — общее число каналов спектра; W_0 — естественная ширина резонансного уровня ядер мессбауэровского изотопа, используемого в эксперименте в исследуемом веществе; число n_0 соответствует ширине W_0 , выраженной в каналах спектра.

Рассмотрим анализируемое вещество, в котором у всех ядер используемого в эксперименте мессбауэровского изотопа как энергия E_a , так и ширина W_a резонансного уровня имеют одно и то же значение. При фазовом анализе вещества методом ядерного γ -резонанса следует применять плоский источник γ -излучения, в матрице которого у всех ядер мессбауэровского изотопа как энергия E_s , так и ширина W_s резонансного уровня имеют одно и то же значение. Мессбауэровский спектр резонансного γ -излучения, полученный в геометрии поглощения с исследуемого образца рассматриваемого вещества при применении указанного источника, представляет собой монолинию. Используя (1), получаем выражения для расчета параметров данной монолинии резонансного поглощения, когда исследуется плоский образец:

$$A = N_{\infty}(0) \alpha \beta \int_{-\infty}^{+\infty} dE \left(\frac{dI_r^{NR}}{dE} \right)_{v_0} \left\{ 1 - \exp[-\sigma_r^a(E) \times \right.$$

$$\left. \times d_a \right\} \exp(-\mu_r^a d_a) / \int_{-\infty}^{+\infty} dE \left(\frac{dI_r^{NR}}{dE} \right)_{v_0};$$

$$S = N_{\infty}(0) \alpha \beta \int_{-\infty}^{+\infty} dv \frac{2E_0}{W_0 c} \int_{-\infty}^{+\infty} dE \left(\frac{dI_r^{NR}}{dE} \right)_{v_0} \times$$

$$\times \{ 1 - \exp[-\sigma_r^a(E) d_a] \} \exp(-\mu_r^a d_a) / \int_{-\infty}^{+\infty} dE \left(\frac{dI_r^{NR}}{dE} \right)_{v_0};$$

$$v_0 = c(E_a/E_s - 1); \sigma_r^a(E) = \sigma_r^a / \{ 1 + [2(E - E_a)/W_a]^2 \}. \quad (2)$$

С учетом результата расчетов [3] из (1), (2) имеем

$$A = N_{\infty}(0) \alpha \beta = \frac{\sigma_r^a d_a \Phi(\sigma_r^a d_a) v_a \exp(-\mu_r^a d_a)}{v_a x (\sigma_r^a d_a) + v_s x (\sigma_s^a d_s)} (1 + J); \quad (3)$$

$$S = N_{\infty}(0) \alpha \beta \sigma_r^a d_a \Phi(\sigma_r^a d_a) v_a \exp(-\mu_r^a d_a); \quad (4)$$

$$W = [v_a x (\sigma_r^a d_a) + v_s x (\sigma_s^a d_s)] W_0 / (1 + J); \quad (5)$$

$$J = \frac{v_s x (\sigma_s^a d_s)}{v_a x (\sigma_r^a d_a) + v_s x (\sigma_s^a d_s)} [1 - 1/(1 - \delta)] \times$$

$$\times x (\sigma_s^a d_s); \quad (6)$$

$$v_a = W_a / W_0; v_s = W_s / W_0;$$

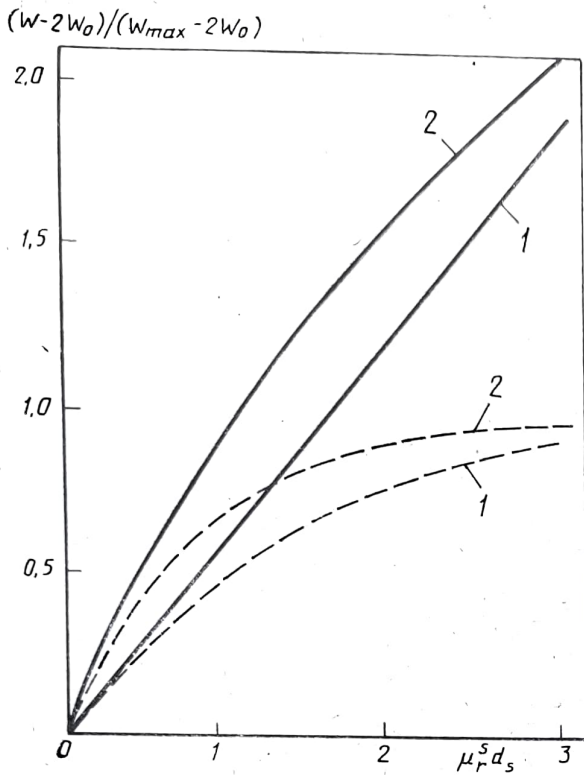
$$\delta = 1 - \frac{1}{\sqrt{\sigma_r^a / \mu_r^a + 1}} - \frac{\mu_r^a d_s \exp(-\mu_r^a d_s)}{1 - \exp(-\mu_r^a d_s)} \times$$

$$\times \frac{\sigma_r^s / \mu_r^s}{\sigma_r^s / \mu_r^s + 1} \frac{\Phi(\sigma_r^s d_s) \sqrt{\sigma_r^s / \mu_r^s + 1}}{x (\sigma_r^s d_s) + \sqrt{\sigma_r^s / \mu_r^s + 1}};$$

$$\Phi(x) = [I_0(x/2) + I_1(x/2)] \exp(-x/2);$$

$$x(x) = x \Phi(x) / [1 - I_0(x/2) \exp(-x/2)] - 1,$$

где $N_{\infty}(0)$ — фон в отсутствие исследуемого образца; α — доля резонансных γ -квантов, испущенных как без, так и с отдачи, в общем потоке γ -излучения, покинувшего объем матрицы источника по направлению нормали к его поверхности и зарегистрированного детектором в отсутствие исследуемого образца; β — доля резонансных γ -квантов, испущенных без отдачи, в общем потоке резонансного γ -излучения, покинувшего объем матрицы источника по направлению нормали к его поверхности; dI_r^{NR}/dE — функция, описывающая энергетическое распределение резонансных γ -квантов, испущенных без отдачи и покинувших объем матрицы плоского источника по направлению нормали к его поверхности; E — энергия резонансных γ -квантов; E_0 — энергия резонансного уровня ядер используемого мессбауэровского изотопа при отсутствии внешних магнитных и электрических полей; σ_r^a и σ_r^s — коэффициенты резонансного ослабления резонансных γ -квантов соответственно в анализируемом веществе и матрице источника; μ_r^a и μ_r^s — коэффициенты нерезонанс-



Зависимость относительного расширения монолинии резонансного поглощения $(W-2W_0)/(W_{\max}-2W_0)$ от $\mu_r^s d_s$, когда учитывается (пунктир) и не учитывается (сплошные кривые) нерезонансное ослабление потока резонансных γ -квантов матрицей источника при значениях σ_r^s/μ_r^s , равных 1 (1) и 10 (2). Здесь W_{\max} — максимально возможное значение W при учете нерезонансного ослабления потока резонансных γ -квантов.

ного ослабления резонансных γ -квантов соответственно в анализируемом веществе и матрице источника; d_a и d_s — толщины соответственно исследуемого образца и матрицы источника; v — скорость движения источника относительно детектора γ -излучения, причем v положительно, если источник движется к детектору; v_0 — скорость движения источника относительно детектора, при которой наблюдается максимальное резонансное поглощение резонансных γ -квантов в анализируемом веществе; c — скорость света; I_0 и I_1 — функции Бесселя соответственно нулевого и первого порядков.

Вид функции dI_r^{NR}/dE приведен в [4]. В формуле (4) множитель E_0/E_s опущен, так как на практике он равен единице с погрешностью до 10^{-16} .

Из (3)—(5) следует, что формулы для расчета A и W отличаются от аналогичных формул из [3] на множители соответственно $(1+J)$ и $(1+J)^{-1}$. В то же время формулы для расчета S совпадают. Согласно (6), если $\mu_r^s = 0$ ($\sigma_r^s/\mu_r^s \rightarrow \infty$), то $J=0$. Однако для реального материала матрицы источника отношение σ_r^s/μ_r^s имеет конечное значение. Поэтому при $d_s \rightarrow \infty$ получаем

$$J = [\nu_s \times (\sigma_r^s d_s) - \nu_s \sqrt{\sigma_r^s/\mu_r^s + 1}] [\nu_a \times (\sigma_r^a d_a) + \nu_s \sqrt{\sigma_r^s/\mu_r^s + 1}]^{-1}.$$

Следовательно, исходя из (3), (5), величины A и W стремятся к некоторым конечным значениям при росте d_s (рисунк). Это объясняется тем, что вследствие нерезонансного ослабления, в основном, регистрируются резонансные γ -кванты, испускаемые из приповерхностного слоя матрицы толщиной $(3-4)/\mu_r^s$. В связи с этим нерезонансное ослабление ограничивает уширение спектральных линий резонансных γ -квантов, возникающее при резонансном поглощении последних матрицей источника γ -излучения.

Положим, что нерезонансным ослаблением потока резонансных γ -квантов матрицей источника можно пренебречь,

если указанное ослабление приводит к изменению амплитуды и ширины монолинии резонансного поглощения не более, чем на 1%. Отсюда должно быть справедливо следующее требование: $J \leq 10^{-2}$. Тогда, используя (6), можно показать, что при $0,3 \leq \mu_r^s d_s \leq 3$, а это обычно имеет место на практике, данное требование выполняется, если параметры источника $\mu_r^s d_s$, и σ_r^s/μ_r^s удовлетворяют условию

$$\sigma_r^s/\mu_r^s \leq 0,469/(\mu_r^s d_s)^{1,842}. \quad (7)$$

Известно, что для ядерных γ -резонансных экспериментов источники γ -излучения изготавливаются двумя способами. В основе первого способа лежит процесс термической диффузии атомов материнского радиоактивного изотопа в матрицу источника. Второй способ базируется либо на облучении матрицы потоком тепловых нейтронов с целью получения в ее объеме ядер материнского радиоактивного изотопа, либо на облучении потоком тепловых нейтронов химического соединения исходного изотопа, на основе которого синтезируется материал матрицы. Для первого способа изготовления условие (7) можно записать в ином виде:

$$\sigma_0 f T R \leq 0,325/[1 - \exp(-y)] (\mu_r^s d_s)^{0,842}; \quad (8)$$

$$y = t_{ex} \ln 2/T,$$

где σ_0 — максимальное сечение резонансного поглощения для используемого мессбауэровского изотопа; f — вероятность эффекта Мессбауэра в матрице источника; R — радиоактивность источника, приходящаяся на единицу его площади; T — период полураспада материнского радиоактивного изотопа; t_{ex} — время эксплуатации источника.

Согласно выполненным расчетам, для второго способа изготовления условие (7) можно переписать так:

$$\sigma_0 f T R \leq 0,325[1 - \exp(-z)]/[z - [1 - \exp(-z)]] \times$$

$$\times \exp(-y) (\mu_r^s d_s)^{0,842}; \quad (9)$$

$$z = t_r \ln 2/T,$$

где t_r — время облучения матрицы источника или исходного изотопа.

Условие (7) необходимо принимать во внимание не только при изготовлении источника, но и при дополнительном облучении последнего с целью восстановления его радиоактивности для дальнейшего использования.

Из (8) и (9) следует, что чем больше значение $\sigma_0 f T$ для мессбауэровского изотопа, тем больше влияние нерезонансного ослабления на форму монолинии резонансного поглощения. С другой стороны, чем больше значение $\sigma_0 f T$ для мессбауэровского изотопа, тем проще условия наблюдения эффекта Мессбауэра на ядрах этого изотопа. Поэтому для наиболее применимых при фазовом анализе мессбауэровских изотопов рассматриваемая проблема может быть актуальной. В таблице для трех мессбауэровских изотопов, имеющих наибольшее значение $\sigma_0 f T$, указано минимальное значение R , при котором влияние нерезонансного ослабления потока резонансных γ -квантов матрицей толщины $1/\mu_r^s$ на форму монолинии резонансного поглощения становится существенным. Приведенные в таблице данные по T , σ_0 и f взяты соответственно из [5, 6], [7] и [8, 9].

Согласно данным таблицы, наиболее остро эта проблема стоит при фазовом анализе вещества с применением мессбауэровского изотопа $^{181}_{73}\text{Ta}$, что связано с относительно малой энергией его резонансного перехода, равной 6,25 кэВ [6], а следовательно, малым значением $1/\mu_r^s$. При применении в исследованиях изотопа $^{181}_{73}\text{Ta}$ используется радиоактивный источник, представляющий собой материнский изотоп $^{181}_{74}\text{W}$ в матрице из изотопа $^{180}_{74}\text{W}$, для которой $1/\mu_r^s$ составляет всего лишь 1,65 мкм [10]. Рассматриваемая проблема может иметь место и для случая фазового анализа вещества с применением изотопа $^{57}_{26}\text{Fe}$. Это также связано с относительно малой энергией его резонансного перехода, равной 14,39 кэВ [7]. Например, для мессбауэровских источников, представляющих собой материнский радиоактивный изотоп $^{57}_{27}\text{Co}$ в матрицах из Cr и Pd значения $1/\mu_r^s$ равны соответственно 26,1 и 20,2 мкм [10]. Изготовление источников с матрицей

Мессбауэровский изотоп	Материнский радиоактивный изотоп	T , сут	$\sigma_0 \cdot 10^{19}$, см ²	f	Температура эксплуатации источника, К	$R \cdot 10^{-8}$ Бк/мм ²
$^{57}_{26}\text{Fe}$	$^{57}_{27}\text{Co}$	270	23,63	0,70	293	1,37*
$^{119}_{50}\text{Sn}$	$^{119m}_{50}\text{Sn}$	250	13,29	0,60	293	1,33**
$^{181}_{73}\text{Ta}$	$^{181}_{74}\text{W}$	120	17,02	$\approx 1,0$	293	1,33**

* — первый способ изготовления;
 ** — второй способ изготовления.

указанной толщины — вполне обычное явление в мессбауэровской спектроскопии резонансного γ -излучения изотопа $^{57}_{26}\text{Fe}$ [2, 11]. Для мессбауэровского изотопа $^{119}_{50}\text{Sn}$ проблема нерезонансного ослабления потока резонансных γ -квантов матрицей источника обусловлена относительно малым сечением ядерной реакции $^{118}_{50}\text{Sn}(n, \gamma)^{119m}_{50}\text{Sn}$, используемой для изготовления источника γ -излучения. Данное сечение равно 0,02 барна [12]. Поэтому с целью уменьшения времени облучения матрицы или навески исходного изотопа, которое может составлять полгода — год и более, необходимо облучать последние толщиной около $1/\mu_r^S$. Следует отметить, что при использовании в исследованиях мессбауэровского изотопа $^{119}_{50}\text{Sn}$ рассматриваемая проблема может возникнуть, в первую очередь, при дополнительном облучении матрицы источника γ -излучения с целью восстановления его радиоактивности для дальнейшего использования.

Таким образом, сформулирован и проанализирован критерий пригодности источника γ -излучения к применению в фазовом анализе вещества методом ядерного γ -резонанса.

ЛИТЕРАТУРА

1. Кирсанов Б. Н., Пермяков Ю. В. // Измерительная техника. — 1989. — № 7. — С. 54.
2. Mullen J. G. e. a. // Phys. Rev. B. — 1988. — V. 37. — N. 7. — P. 3226.
3. Быков Г. А., Фам Зуи Хиен // ЖЭТФ. — 1962. — Т. 43. — № 3. — С. 909.
4. Сеницын С. В. // Заводская лаборатория. — 1992. — Т. 58. — № 12. — С. 24.
5. Джелепов Б. С., Пекер Л. К. Схемы распада радиоактивных ядер $A < 100$. — Л.: Наука, 1966.
6. Джелепов Б. С., Пекер Л. К., Сергеев В. О. Схемы распада радиоактивных ядер $A \geq 100$. — Л.: Изд-во АН СССР, 1963.
7. Шпинель В. С. Резонанс гамма-лучей в кристаллах. — М.: Наука, 1969.
8. Иркаев С. М., Кузьмин Р. Н., Опаленко А. А. Ядерный гамма-резонанс. — М.: Изд-во МГУ, 1970.
9. Steyert W. A., Tayler R. P., Storms E. K. // Phys. Rev. Lett. — 1965. — V. 14. — N 18. — P. 739.
10. Немец О. Ф., Гофман Ю. В. Справочник по ядерной физике. — Киев: Наукова думка, 1975.
11. Stephen J. // Nucl. Instr. Meth. — 1964. — V. 26. — N 2. — P. 269.
12. Hohenemser C. // Phys. Rev. — 1965. — V. 139. — N 1A. — P. A185.