

МЕССБАУЭРОВСКИЙ ПОЛЯРИМЕТР ДЛЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ПО ПОИСКУ НАРУШЕНИЯ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ЧЕТНОСТИ В ДИСПРОЗИИ-161

© В.Г.Циноев, В.М.Черепанов, А.В.Балуев,
В.С.Митягина, А.А.Антипов

НПО Радиевый институт им. В.Г.Хлопина,
190000 Санкт-Петербург, Россия
Российский научный центр «Курчатовский институт»,
123182 Москва, Россия
(Поступила в Редакцию 8 декабря 1995 г.
В окончательной редакции 20 мая 1996 г.)

Исследованы мессбауэровские спектры ряда впервые синтезированных смешанных оксидов диспрозия. Показано, что для двойного оксобората натрия-диспрозия наблюдается рекордное из известных по данным литературы значение квадрупольного расщепления для резонанса на диспрозии-161 при весьма высокой вероятности эффекта Мессбауэра, что, по-видимому, позволяет использовать указанное соединение для выращивания монокристалла и использовать его в качестве поляриметра для обнаружения в мессбауэровском переходе ^{161}Dy круговой поляризации, вызванной нарушением p -четности.

Экспериментальное подтверждение слабого взаимодействия нуклонов привело к интенсивному поиску эффектов его проявления. Известные к настоящему времени данные в основном относятся к эффектам нарушения P -четности в ядерных (многонуклонных) системах при низких энергиях. В ядре слабое взаимодействие между нуклонами смешивает состояния с одним и тем же моментом, но с противоположными четностями. В результате в гамма-переходах возникает интерференция регулярного мультиполя, существующего и в отсутствие слабого взаимодействия, и нерегулярного, обусловленного слабым взаимодействием.

Если ядро обладает векторной поляризацией, то такая интерференция проявляется в асимметрии вылета гамма-квантов, что может быть вызвано интерференцией излучения как одного типа, но разных мультипольностей (например, $E1-E2$), так и разного типа, но одной мультипольности (например, $E1-M1$). Для неполяризованного же ансамбля ядер слабое взаимодействие проявится в возникновении круговой поляризации (P_c) излучения, которая возможна лишь в случае интерференции электрического и магнитного мультиполя одного порядка (например, $E1-M1$ или $E2-M2$).

Методика измерения P_c для неполяризованных радиоактивных ядер построена на применении комптоновского поляриметра с ферромагнитным рассеивателем. Однако чувствительность такого поляриметра

ограничена значительным фоном от сопутствующего тормозного излучения электронов, которое также приобретает круговую поляризацию.

Существует также способ детектирования круговой поляризации методом мессбауэровской поляриметрии [1]. В этом варианте методики поляриметром может служить намагниченное ферромагнитное вещество, содержащее мессбауэровские ядра с зеемановски расщепленным спектром поглощения. Как показывают оценки, эффективность такого резонансного фильтра всегда существенно выше, чем у комптоновского поляриметра из намагниченного железа, так как поляризационная составляющая сечения комптоновского поглощения меньше сечения резонансного поглощения. При всей кажущейся простоте этого метода в ряде случаев вследствие нежелательного фотоэлектрического поглощения возникают трудности с подбором оптимального соотношения количества вещества ферромагнитной матрицы и количества резонансного изотопа. Кроме того, при наличии магнитного сверхтонкого расщепления уменьшается интенсивность поглощения, приходящаяся на отдельную линию спектра. Поэтому появляется необходимость применения другого метода анализа круговой поляризации с использованием только квадрупольно расщепленного фильтра-анализатора, поскольку в этом случае число линий поглощения всегда меньше и не требуется наложения внешнего магнитного поля.

Известно, что монокристаллический резонансный поглотитель, в котором имеется взаимодействие квадрупольного момента ядер со статическим градиентом электрического поля, может быть использован для создания линейной поляризации излучения P_l [2]. При прохождении частично поляризованного по кругу излучения со степенью поляризации P_c через одноосный кристалл, содержащий резонансный изотоп, за счет хотя и незначительного, но все же различающихся коэффициентов преломления для двух взаимно перпендикулярных линейных поляризаций волны должно наблюдаться фарадеевское вращение плоскости поляризации. При этом максимальная линейная поляризация такого излучения, пропорциональная P_c , возникает в направлении 45° по отношению к плоскости «ось кристалла-импульс фотона» [3]. Однако вызванная нарушением P -четности добавка к P_l (равная $P_c I$, где I — интенсивность линии поглощения) в работе [3] не рассматривалась. С учетом же этой добавки дальнейший расчет уже можно проводить в рамках теории, развитой в [3].

Настраиваясь в резонанс на отдельные, квадрупольно расщепленные компоненты, имеющие противоположные по знаку чувствительности к линейной поляризации, можно получать фарадеевское вращение в разных направлениях. В эксперименте этот новый весьма чувствительный метод измерения слабой (на уровне 10^{-3}) P -нечетной круговой поляризации излучения неполяризованного ансамбля ядер был продемонстрирован с помощью поляризатора из монокристалла SnS [4] на олове-119, для которого эта величина ранее была определена другим методом [5].

К настоящему времени круг ядер, в радиационных переходах которых надежно установлен « P -нечетный» эффект, ограничен четырьмя с регулярным $M1$ -переходом (из них методом мессбауэровской спектроскопии для олова-119 [5] и железа-57 [6]), одним ядром с $E1$ -переходом

(нептуний-237 [7]). Представляется интересным расширить класс упомянутых ядер за счет мессбауэровского перехода типа $E1$ в диспрозии-161.

Для надежного обнаружения эффекта несохранения пространственной четности в гамма-переходе диспрозия-161 возникла необходимость в получении соединений диспрозия, обладающих возможно более высокими значениями квадрупольного расщепления (КР) и вероятности эффекта Мессбауэра. Максимальным из известных значений КР в ряду соединений диспрозия характеризуется его титанат состава $Dy_2Ti_2O_7$, в связи с чем это вещество и было синтезировано в первую очередь. Однако при выращивании монокристалла из него было обнаружено заметное разложение, что не позволило использовать это соединение в упомянутых выше экспериментах по поиску нарушения P -четности. Представлялось целесообразным провести поиск и синтез соединений диспрозия (с возможно большим значением КР), которые были бы пригодны для выращивания монокристаллов при условии сохранения высоких значений вероятности эффекта Мессбауэра.

Естественно предположить по аналогии с известными результатами, полученными для олова-119, железа-57, теллура-125 (см., например, [8,9]), что значения КР для резонанса на диспрозии-161 коррелируют с симметрией координационных полиэдров, т.е. с симметрией внутренней координационной сферы центрального иона-комплексообразователя. Для анализа степени искажения полиэдра мы воспользовались сводкой данных, представленных в работе [10]. Эта монография посвящена обобщению известных из литературы структурных исследований соединений РЗЭ. В качестве меры искаженности полиэдра авторы предлагают использовать максимальную разницу межатомных расстояний РЗЭ-кислород Δ_{max} (большинство известных структурных работ относится именно к оксидным системам). При анализе этих данных мы выбрали соединения, значения Δ_{max} которых сравнимы с таковыми для титанатов РЗЭ или превосходят их, причем рассматривали этот параметр и для других РЗЭ, поскольку сведения по соединениям собственно диспрозия ограничены. С точки зрения максимальной искаженности полиэдра привлекают внимание боратные, силикатные, фосфатные и вольфраматные системы, в рамках которых проводился поиск и синтез соединений с требуемыми параметрами, причем в основном использовался так называемый «молекулярный» подход, обоснованный в [8,9]. Отметим, что в предыдущих исследованиях соединений олова нам удалось увеличить значение КР не только за счет введения во внутреннюю координационную сферу атомов кислорода с различной электрон-донорной способностью (оксофосфаты и оксобораты), но также путем синтеза многокомпонентных оловосодержащих соединений, включающих щелочные и щелочно-земельные металлы в различных соотношениях.

Таким образом, в настоящей работе основное внимание уделялось именно многокомпонентным системам, включающим диспрозий. В процессе синтеза образцов использовался метод совместного термолитического реагирования компонентов [8,9,11].

Результаты рентгенографического исследования позволили отобрать ряд образцов, представляющих собой практически чистые фазы, и провести их исследование методом мессбауэровской спектроскопии.

Экспериментальные значения величины изомерного сдвига (ИС) (относительно DyF_3), квадрупольного расщепления (КР) ($eqQ/4$) и площади спектра (ПС)

Соединение	ИС, mm/s	КР, mm/s	ПС, %
$Dy_2Ti_2O_7$	0.4(3)	4.5(8)	6.2(4)
$Na_2DyO_{0.5}SiO_4$	0.0(2)	5.1(6)	11.3(3)
$Cs_2DyO_{0.5}SiO_4$	0.5(2)	6.3(4)	10.3(2)
$Na_2Dy_2O(PO_4)_2$	0.3(1)	4.2(3)	9.7(2)
$Cs_2Dy_2O(PO_4)_2$	0.4(2)	3.5(5)	7.7(2)
Na_2DyOBO_3	0.5(1)	7.2(2)	11.6(1)
$CsDyO_{0.5}BO_3$	0.4(1)	6.2(3)	15.3(2)
$Na_5DyO(BO_3)_2$	0.5(3)	6.0(8)	3.9(2)
$Sr_3Dy_2(BO_3)_4$	0.2(2)	5.9(6)	4.7(2)
$Cs_2DyO_{1.5}WO_4$	0.5(3)	5.6(7)	4.5(2)

П р и м е ч а н и е. В скобках указана погрешность в последнем значащем разряде.

Из-за сравнительно короткого периода полураспада материнского ядра тербия-161, а также из-за необходимости облучения в потоке тепловых нейтронов матрицы, служащей источником резонансного излучения, мессбауэровские измерения на диспрозии-161 применяются не так широко, как для известных резонансов на железе-57, олове-119 и даже теллуре-125. Исходной мишенью, облученной нейтронами для получения источника резонансного излучения служила спрессованная таблетка из поликристаллического $^{162}Dy^{160}GdF_6$, дающего минимальную из известных наблюдаемую ширину линии $\Gamma = 6.3$ mm/s. В результате ядерной реакции $Gd(n, \gamma) - ^{161}Gd(\beta, 3.7 \text{ min}) - ^{161}Tb(6.9 \text{ days})$ в мишени получался тербий-161 — материнский изотоп для образования диспрозия-161 в возбужденном состоянии, при распаде которого реализуется выход до 40% резонансного γ -излучения. Исследуемые поглотители представляли собой порошки, запрессованные в полистирол, с эффективной толщиной 20 mg/cm^2 по естественной смеси изотопов диспрозия.

Мессбауэровские спектры измерялись при комнатной температуре на стандартном спектрометре, работающем в режиме постоянного ускорения в диапазоне скоростей источника до 24 mm/s . При анализе спектров учитывалось, что мессбауэровский переход в изотопе ^{161}Dy с энергией 28.65 keV и временем жизни 28.2 ns происходит между состояниями с одинаковым значением спина $5/2$, но с разной четностью и является электрическим дипольным переходом. Величины квадрупольных моментов основного ($+2.35 \text{ barn}$) и возбужденного ($+2.34 \text{ barn}$) состояний практически совпадают, поэтому в отсутствие магнитного сверхтонкого расщепления мессбауэровский спектр состоит из пяти эквидистантных линий разной интенсивности, симметрично спадающей от центра спектра. Центральный пик формируется от всех шести возможных переходов, происходящих без изменения магнитного квантового числа ($\Delta M = m_e - m_g = 0$, где $m_{e,g}$ — магнитные квантовые числа основного и первого возбужденного состояний ядра) с

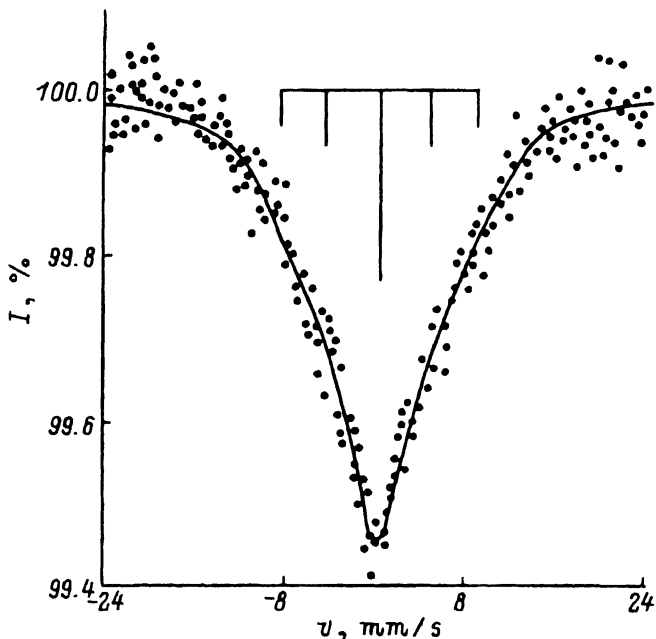


Рис. 1. Экспериментальный мессбауэровский спектр натриевого оксобората диспрозия $\text{Na}_2\text{DyOBO}_3$, обладающего максимальным КР среди известных соединений диспрозия (спектры других исследованных соединений аналогичны). Сплошная линия проведена по результатам обработки спектра по методу наименьших квадратов в приближении лоренцевской формы линии. Вертикальными линиями отмечены положения и относительные интенсивности квинтета пиков КР.

добавлением двух переходов с $|DM| = 1$ между состояниями со спинами $+ - 1/2$ и $- + 1/2$. Два крайних пика поглощения образованы переходами между состояниями $+ - 5/2$ и $+ - 3/2$, а также $+ - 3/2$ и $+ - 5/2$. Два внутренних пика отвечают переходам между $+ - 3/2$ и $+ - 1/2$, а также $+ - 1/2$ и $+ - 3/2$. Интенсивности пиков относятся как 10:16:53:16:10 (рис. 1). Поэтому при обработке спектров по методу наименьших квадратов в приближении лоренцевской формы линии использовалась простая модель квинтета эквидистантных линий одинаковой ширины с вышеприведенным отношением их интенсивностей. Результаты обработки спектров приведены в таблице, где представлены величины изомерного сдвига (ИС), КР и площади спектра (ПС), пропорциональной вероятности эффекта Мессбауэра для исследованных соединений. При анализе данных таблицы обращает на себя внимание тот факт, что значения ИС меняются от 0 до 0.5 mm/s , что на порядок меньше наблюдаемой ширины линии и свидетельствует о сравнительно низкой чувствительности этого параметра к структурным изменениям. В то же время величина КР изменяется более чем в два раза при переходе от фосфата цезия-диспрозия к натриевому оксоборату. Последнее соединение, кроме того, дает также и сравнительно большой эффект резонансного поглощения, что и обуславливает выбор его в качестве основного кандидата для проведения следующего этапа исследований. Отметим, что, несмотря на значительную величину квадрупольного расщепления, в спектре (рис. 1) отдельные его компоненты разрешены плохо из-за сильного уширения линии по сравнению

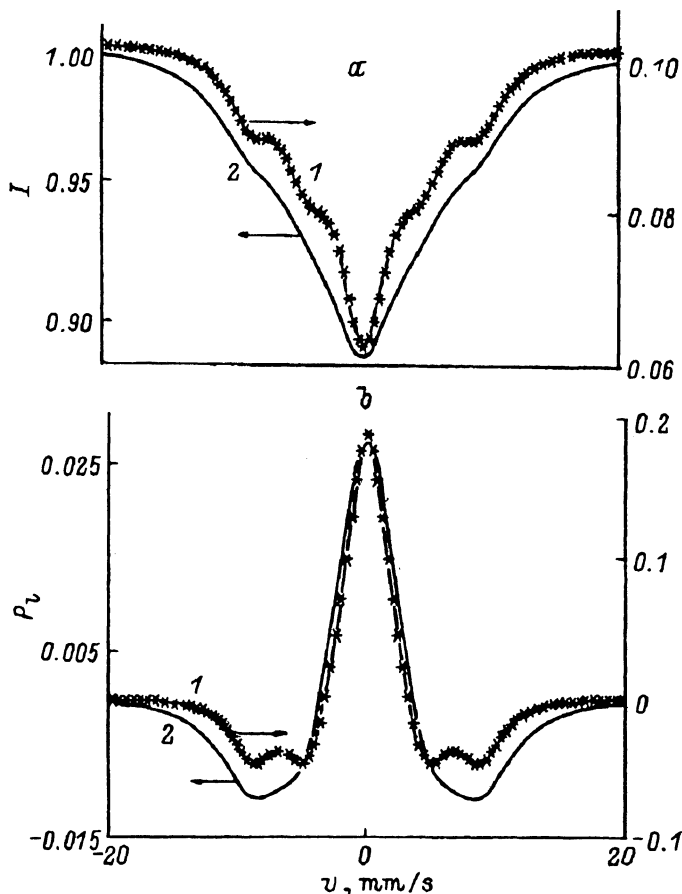


Рис. 2. Расчетные мессбауэровские спектры (а) и степень линейной поляризации резонансного гамма-излучения (б), прошедшего через монокристалл натриевого оксобората диспрозия толщиной в две длины фотопоглощения, с осью C под углом 55° к направлению пучка в вариантах резонансного (1) и нерезонансного (2) детектирования.

с естественной. Разрешение спектральных линий может быть повышено при использовании резонансного скинтилляционного детектора на основе соединения DyF_3 . На рис. 2 показаны рассчитанные в рамках теории [3] спектры поглощения и степень линейной поляризации P_L резонансного гамма-излучения, прошедшего через монокристалл соединения $\text{Na}_2\text{DyOBO}_3$ толщиной в две длины фотопоглощения, с осью C , ориентированной под углом 55° к направлению пучка. В расчете принята толщина резонансного слоя 4 mg/cm^2 DyF_3 , обогащенного изотопом диспрозия-161 до 86% (эти параметры характеризуют уже изготовленный резонансный детектор). Расчетная кривая 2 на рис. 2,а для случая обычной нерезонансной регистрации хорошо описывает экспериментальный спектр, показанный на рис. 1. В то же время разрешение в случае резонансной регистрации (кривая 1 на рис. 2,а) почти в полтора раза выше за счет изменения формы линии от лоренциана к квадрату лоренциана. Еще большая разница между двумя способами

регистрации (почти на порядок) заметна в эффективности регистрации линейной поляризации P_l (ср. правую и левую шкалы на рис. 2, *b*). P_l максимальна и положительна при нулевой относительной скорости источника и кристалла-поляризатора и меняет знак при настройке на другие линии поглощения. Предварительные оценки показывают реальную возможность обнаружения этой разницы на опыте.

В настоящей работе синтезирован ряд новых, не описанных ранее фосфатов, силикатов, боратов и вольфраматов диспрозия. Для целей постановки эксперимента по наблюдению несохранения P -четности проведенные мессбауэровские измерения выявили наиболее подходящие из них соединения. В настоящее время предпринимаются попытки выращивания монокристаллов натриевого оксобората диспрозия. Кроме того, предполагается продолжить поиск и других соединений, перспективных с точки зрения рассматриваемой проблемы.

Список литературы

- [1] H. Frauenfelder. Phys. Rev. **126**, 1065 (1962).
- [2] P. Imbert. J. Phys. (Paris) **27**, 429 (1966).
- [3] M. Blum, O.C. Kistner. Phys. Rev. **171**, 417 (1968).
- [4] V.G. Tsinoev. Rep. at Int. Symposium on Weak and Electro-Magnetic Interactions in Nuclei. Dubna (1992).
- [5] А.В. Балувев, Л.В. Инжечик, Е.В. Мельников, Б.И. Рогозев, А.С. Хлебников, В.Г. Циноев, В.М. Черепанов. Письма в ЖЭТФ **43**, 11, 507 (1986).
- [6] Л.В. Инжечик, А.С. Хлебников, В.Г. Циноев, Б.И. Рогозев, М.Ю. Силин. ЖЭТФ **93**, 1569 (1987).
- [7] Л.В. Инжечик, А.С. Хлебников, В.Г. Циноев, Н.К. Черезов. ЯФ **51**, 1, 14 (1990).
- [8] А.А. Антипов, А.В. Балувев, В.С. Митяхина. Тез. докл. III Всесоюз. совещ. «Спектроскопия координационных соединений». Краснодар. (1984). С. 109.
- [9] В.С. Митяхина. Автореф. канд. дис. Радиевый институт им. В.Г.Хлопина. СПб (1986). 183 с.
- [10] И.А. Бандуркин. Особенности кристаллохимии соединений редкоземельных элементов. М. (1984). 232 с.
- [11] А.В. Baluev, B.I. Rogozev, V.S. Mitiakhina. Appl. Mossbauer Effect / Ed. Yu.M. Kagan, I.S. Lybutin. Gordon and Breach Sci. Publishers. N.Y.-London-Paris-Tokio (1985). V. 2. 737 p.