

ЭФФЕКТ МЁССБАУЭРА НА Np^{237}

Б.М.Александров, А.В.Калмык, А.С.Крикохатский,
Б.Г.Лурье, А.Н.Мурин, В.Ф.Романов

Изотоп Np^{237} имеет мёссбаузерский уровень с энергией 59,6 кэв и временем жизни $6,3 \cdot 10^{-8}$ сек. Наиболее удобным источником мёссбаузерского излучения является Am^{241} , α -распад которого приводит к образованию этого изомерного состояния Np^{237} . Мёссбаузерские спектры, соответствующие различным соединениям америция, дают сведения о формах стабилизации нептуния за время $\sim 10^{-7}$ сек после α -распада америция. Замечательным является то, что изомерные сдвиги линий достигают нескольких сантиметров в секунду. Повышенная чувствительность сдвигов к электронному окружению может служить эффективным средством для исследования состояния нептуния в кристаллических веществах.

В настоящей работе исследован эффект Мёссбаузера на нептунии при использовании различных источников и поглотителей. Источниками служили: AmO_2 , $\text{AmO}_2(\text{NpO}_2)$, где AmO_2 изоморфно введен в решетку NpO_2 , AmF_3 и металлический америций, введенный в решетку тория, — $\text{Am}(\text{Th})$. Поглотителями являлись NpO_2 и Np_3O_8 . Параметры кристаллических решеток соединений америция и нептуния были определены методом рентгеноструктурного анализа и найдены соответствующими известным данным.

Измерения мёссбаузерских спектров проводились при температуре 77°К в диапазоне скоростей до ± 10 см/сек на установке электродинамического типа. Для регистрации γ -излучения использовался кристалл $\text{NaJ}(\text{Tl})$ толщиной 2 мм. Регистрируемая часть γ -излучения соответствовала фотопику от γ -лучей с энергией 59,6 кэв. Запись спектра осуществлялась 400-канальным анализатором. Чтобы учесть фон, обусловленный γ -излучением Ra^{233} (продукт распада Np^{237}), производилось сравнение числа регистраций от поглотителя и от источника с поглотителем за одно и то же активное время работы анализатора.

При исследовании эмиссионных мёссбаузерских спектров в качестве поглотителя использовался NpO_2 . Источник AmO_2 дает несколько линий, одна из которых находится вблизи нулевой скорости [1]. Измененный нами изомерный сдвиг этой линии оказался равным $0,7 \pm 0,1$ мм/сек, что хорошо согласуется с данными работы [2] —

сдвиг $\sim 0,7 \text{ мм/сек}$. С источником AmO_2 была изучена величина эффекта (линия с $\delta = 0,7 \text{ мм/сек}$) в зависимости от толщины поглотителя NpO_2 . Получено, что насыщение эффекта $\sim 1\%$ достигается при толщине $\sim 150 \text{ мк/см}^2$. Поэтому использование более толстых поглотителей нецелесообразно.

В мёссбауэровском спектре источника $\text{AmO}_2(\text{NpO}_2)$ обнаруживается линия при $v \approx 0$, которая наблюдалась в других работах [3, 4]. Однако, кроме этой линии, имеется линия при $4,0 \pm 0,4 \text{ мм/сек}$. Если эффект, соответствующий первой линии равен 1%, то эффект от второй линии равен $\sim 0,15\%$. В остальной области исследованных скоростей (до 10 см/сек) в пределах до 0,03% никаких других линий найдено не было.

AmF_3 , согласно работе [1], при температуре $4,2^\circ\text{K}$ имеет характерную линию при $v = -4,4 \text{ см/сек}$. Нами обнаружено, что, кроме этой линии, при температуре 77°K имеется более интенсивная линия вблизи $v = 0$.

Источник $\text{Am}(\text{Th})$ с поглотителем NpO_2 дает наиболее узкую из известных линий с полушириной $\Gamma_{\text{эксп}}$ (ширина на половине высоты) равной $1,7 \pm 0,2 \text{ мм/сек}$ и сдвигом $\delta = 3,4 \pm 0,2 \text{ мм/сек}$. Оценено, что полуширина линии источника $\text{Am}(\text{Th})$ составляет $\sim 0,4 \text{ мм}$, т.е. превышает естественную ширину — $\Gamma_{\text{ест}} = 0,036 \text{ мм/сек}$ — примерно в 10 раз [5].

Измерения с источником $\text{Am}(\text{Th})$ и поглотителем из Np_3O_8 показали, что в спектре присутствует линия с изомерным сдвигом $\delta = -2,1 \text{ см/сек}$, причем параметр квадрупольного расщепления составляет $1/4 \text{ eqQ} = 1,4 \pm 0,2 \text{ см/сек}$. Интересно отметить, что эта же линия при температуре $4,2^\circ\text{K}$ имеет большее квадрупольное расщепление, а именно $1/4 \text{ eqQ} = 2,58 \pm 0,03 \text{ см/сек}$. В работе [1] была найдена и другая линия со сдвигом $\delta = -1,55 \text{ см/сек}$, которая имеет как квадрупольное, так и магнитное расщепления. Эта линия в пределах до 0,03% при 77°K нами обнаружена не была.

На основе полученных данных можно установить корреляцию между изомерными сдвигами и зарядовыми состояниями цептуния, образующегося после α -распада америция. Состоянию Np^0 соответствует сдвиг, приходящийся на сравнительно малую скорость, что следует из положения линии источника $\text{Am}(\text{Th})$. Сдвиг для Np^{+4} , по-видимому, также приходится на область вблизи $v = 0$ и обнаруживается в источниках AmO_2 и $\text{AmO}_2(\text{NpO}_2)$.

В источнике AmF_3 возникают два состояния нептуния: Np^{+4} с $\delta = 0$ и Np^{+3} с $\delta = -4,1 \text{ см/сек}$. При переходе от Np^{+4} к состоянию с большим зарядом (Np_3O_8) величина сдвига становится положительной и равной $2,44 \text{ см/сек}$. Действительно, положение линии — $2,1 \text{ см/сек}$ поглотителя Np_3O_8 относительно линии источника $\text{AmO}_2(\text{NpO}_2)$, приходящейся на $v = 0$, будет равно $2,1 + 0,34 = 2,44 \text{ см/сек}$; здесь меняется знак сдвига и учитывается сдвиг линии источника $\text{Am}(\text{Th})$, который использовался в опытах с Np_3O_8 .

Полученные результаты не противоречат данным работы [1], где определялись области изомерных сдвигов для разных зарядовых состояний нептуния при температуре $4,2^\circ\text{K}$. Согласно этим данным, переход от Np^{+3} к Np^{+6} связан с последовательным изменением сдвигов кроме того, изменение сдвига при переходе от Np^{+3} к Np^{+4} максимально. Если учесть экранирующее действие $5f$ -электронов на $6s$ -электроны, то из первого обстоятельства следует, что ядро Np^{237} в возбужденном состоянии деформировано меньше, чем в основном (знак величины $\Delta a/a$ отрицательный).

В состоянии Np^{+3} по сравнению с состоянием Np^{+4} сохраняется лишь $6d$ - или $5f$ -электрон. Экранирующее действие $6d$ -электрона на $6s$ -электроны больше, чем действие $5f$ -электрона. Поэтому максимальный сдвиг при переходе от Np^{+3} к Np^{+4} свидетельствует, по-видимому о том, что зарядовому состоянию Np^{+3} соответствует электронная конфигурация $5f^3 6d$.

Ленинградский
государственный университет
им. А.А. Жданова

Поступило в редакцию
26 июня 1968 г.

Литература

- [1] J. A. Stone, W. L. Pilling. Report of the Symposium of the Faraday Society, 327-10-11, IC, 018421, December, 1967, preprint.
- [2] J. A. Stone. Applications of the Mössbauer Effect in Chemistry and Solid-State Physics, Technical reports series, No 50, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1966, p. 179.
- [3] J. A. Stone, W. L. Pilling. Phys. Rev. Lett., 13, 200, 1964.
- [4] В.А.Брюханов, В.В.Овчинин, А.И.Перышкин, Е.И.Ржехина, В.С.Шпильев. ФТТ, 9, 1519, 1967.
- [5] В.М.Александров, А.В.Калямин, А.С.Кривохатский, Б.Г.Лурье, А.Н.Мурин, Ю.Ф.Романов. ФТТ, 10, 1896, 1968.