

倪新伯 编著



# 扰动角关联 及其应用

原子能出版社

# 扰动角关联及其应用

倪新伯 编著

原子能出版社

## 内 容 简 介

本书系统地叙述了扰动角关联的原理、理论、实验方法及其在核物理、固体物理和生物学中的应用。可作为大专院校高年级学生、教师及从事核物理、固体物理、生物学、化学等研究工作者的入门向导。

扰动角关联及其应用

倪新伯 编著

原子能出版社出版

(北京 2108 信箱)

市政水泥制品厂印刷厂

(北京西郊永定路)

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本  $787 \times 1092 \frac{1}{32}$  印张  $4\frac{7}{8}$ ·字数 106 千字

1985 年 5 月第一版 · 1985 年 5 月第一次印刷

印数 1—2,000 · 统一书号: 15175·600

定价: 0.65 元

## 序 言

扰动角关联方法是一种研究超精细相互作用的核物理技术，它于1950年被发现，次年就用于核物理的研究工作。随着角关联技术本身的不断发展，自六十年代起，研究内容逐渐扩展到固体物理、磁学、生物学、化学及原子物理等许多领域，并取得了一系列有实用价值的成果，成为一门活跃的边缘学科，有着广阔的前景。

目前国内还没有一本有关扰动角关联的专著，从事这方面工作的人也较少，于是作者搜集了国内外有关的资料，并结合自己多年工作的体会，编写了“扰动角关联及其应用”一书，希望有助于国内从事核物理、固体物理、生物和化学等研究工作的同志能更多地了解、掌握这项核技术，并应用到各自的研究工作中去，为我国社会主义建设事业作出更多的贡献。

本书简略地叙述了扰动角关联的原理、理论、实验方法及其在核物理、固体物理、生物学领域中应用的情况，同时以较少的篇幅及有代表性的例子，帮助读者系统地全面地了解、掌握这项核技术。但限于作者水平，书中难免有错误和不当之处，恳请读者批评指正。

在本书的编写过程中，承蒙梅镇岳教授审阅了初稿，作了不少修改，并提出了宝贵的建议，在此表示衷心感谢。

倪新伯

1982年8月

# 目 录

|                       |    |
|-----------------------|----|
| 第一章 绪论                | 1  |
| § 1.1 扰动角关联的发展概况      | 1  |
| § 1.2 与其它超精细相互作用方法的比较 | 3  |
| 第二章 扰动角关联原理           | 6  |
| § 2.1 角关联及扰动角关联       | 6  |
| § 2.2 扰动角关联理论的一般描述    | 8  |
| § 2.3 静态相互作用(经典场)     | 12 |
| 1. 应用外加磁场             | 18 |
| 2. 静电四极相互作用           | 22 |
| 3. 静态磁的和电的联合相互作用      | 34 |
| § 2.4 静态超精细耦合         | 43 |
| 1. 孤立原子, 各向同性的超精细耦合   | 43 |
| 2. 应用外磁场的各向同性超精细耦合    | 47 |
| 3. 各向异性的超精细耦合         | 52 |
| § 2.5 依赖于时间的扰动        | 54 |
| 1. 任意变动的相互作用、弛豫过程     | 54 |
| 2. 时间有关扰动的一般处理        | 55 |
| 3. 在液体中随时间变化的电四极相互作用  | 59 |
| 4. 电子的顺磁弛豫            | 68 |
| § 2.6 衰变过程对角关联的影响     | 70 |
| 1. 电子俘获及内转换           | 70 |
| 2. $\beta$ 粒子的发射      | 71 |
| 3. $\alpha$ 粒子        | 72 |
| 第三章 扰动角关联实验方法基础       | 75 |
| § 3.1 积分扰动角关联         | 75 |
| § 3.2 时间微分扰动角关联       | 79 |

|       |                                              |     |
|-------|----------------------------------------------|-----|
| § 3.3 | 核磁共振扰动角关联 .....                              | 85  |
| § 3.4 | 频闪观测扰动角分布 .....                              | 89  |
| 第四章   | 扰动角关联在核物理研究中的应用 .....                        | 95  |
| § 4.1 | 测量原子核激发态的磁矩 .....                            | 95  |
| § 4.2 | 测量原子核激发态的电四极矩 .....                          | 97  |
| § 4.3 | 测量重离子的射程和歧离 .....                            | 101 |
| § 4.4 | 研究在真空中自由飞行时的超精细相互作用 .....                    | 105 |
| § 4.5 | 测量短寿命的时间 .....                               | 107 |
| 第五章   | 扰动角关联在固体物理中的应用 .....                         | 109 |
| § 5.1 | 测量 $^{111}\text{Cd}$ 在 Ni 内的超精细场 .....       | 110 |
| § 5.2 | 研究固体辐射损伤及退火的影响 .....                         | 112 |
| § 5.3 | 研究 II 类超导体内的磁场分布 .....                       | 117 |
| § 5.4 | 测量金属和合金中的乃特位移 .....                          | 120 |
| § 5.5 | 抗铁磁性材料微观结构的分析 .....                          | 123 |
| § 5.6 | 利用扰动角关联方法分析不同<br>冶炼技术所得合金的显微结构 .....         | 126 |
| 第六章   | 扰动角关联方法在生物学研究中的应用 .....                      | 129 |
| § 6.1 | 溶液中蛋白分子构型的研究 .....                           | 129 |
| § 6.2 | 利用扰动角关联方法研究正常鼠和<br>癌鼠在蛋白分子内的差异情况 .....       | 131 |
| § 6.3 | 扰动角关联方法检测放射性核素<br>在生物体内和体外的化学形式 .....        | 132 |
| § 6.4 | 放射性标记的小分子作为探针核的<br>扰动角关联试验 .....             | 134 |
| § 6.5 | 用扰动角关联方法测定生物分子络合物<br>的解离常数 .....             | 135 |
| § 6.6 | 测量输铁蛋白与 $^{111}\text{In}$ 结合的电四极相互作用频率 ..... | 136 |
| § 6.7 | 研究固氮酶的反应机理 .....                             | 138 |
| § 6.8 | 研究小分子与遗传物质 DNA 的结合 .....                     | 141 |

|               |     |
|---------------|-----|
| 第七章 结束语 ..... | 144 |
| 参考文献 .....    | 146 |

# 第一章 绪 论

## § 1.1 扰动角关联的发展概况

扰动角关联是研究超精细相互作用的一种重要方法，早在 1950 年布拉第(Brady)和道许(Deutch)<sup>[1]</sup>提出在外磁场作用下，通过  $\gamma$ - $\gamma$  级联的短寿命中间态磁矩的进动将引起  $\gamma$ - $\gamma$  角关联的旋转。次年，法兰福特(Frauenfelder)<sup>[2]</sup>等首次应用扰动角关联技术，他们利用外加磁场，通过测量在外磁场作用下角关联的衰减得到了  $^{111}\text{Cd}$  的能量为 247 千电子伏、半寿命为 84 毫微秒激发态的磁矩。其后十年主要通过  $\gamma$ - $\gamma$  扰动角关联，测定了大约五十个激发核态的磁矩。

非满壳层电子、金属里存在着自旋极化的传导电子和离子晶体内的超交换作用，都可以在介质的局部区域内产生强大的磁场，称为超精细磁场。所谓超交换作用可用一个简单的三原子超交换模型来说明： $\text{M}^{2+}-\text{F}^{-}-\text{Cd}^{2+}$  ( $\text{M}=\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$  等)。已知抗铁磁体大多数是离子晶体，即在晶格点阵上的磁性离子被近邻点阵上的无磁性离子隔开的化合物。两个磁性离子轨道电子的交换作用是通过隔在磁性离子间的无磁性离子来传递的，因而这种间接的交换作用为超交换作用。非对称性排列的配合基或被研究的离子具有非满壳层的电子，在局部区域内都可产生强大的电场梯度，这些电场称为超精细电场。

1959年,塞莫洛夫(Samoilov)<sup>[3]</sup>等人发现金在铁中的兆高斯量级的超精细磁场。后来又不断发现很多顺磁物质,其顺磁离子的轨道电子能提供很高的超精细场。而一些稀土元素,其未填满的4f电子能产生高达 $10^7$ 高斯的超精细磁场。这些超精细场的不断发现,给开展扰动角关联工作开拓了广阔的天地。因而在六十年代,广泛利用这些超精细场,测定了大约二百六十多个激发核态的磁矩和电四极矩,绝大部分是利用了 $\gamma$ - $\gamma$ 扰动角关联方法。在重离子核反应中产生的具有百分之几光速的生成核,在铁磁物质及一般固体材料慢化过程中,可使大部分外层电子电离,剩下的少数几个电子可使内部s电子极化而在核上产生一个 $10^8$ 高斯量级的瞬时场。七十年代以来利用这种核反应瞬时场已测定了一些较高激发核态的磁矩。

扰动角关联理论和实验技术都在不断发展和日趋完善中。尼尔逊(Nielson)和道许<sup>[4]</sup>(1967年)将扰动角关联技术用于电子级联中。1969年安塞特(Ansaldi)等<sup>[5]</sup>和阿比尔斯考夫(Abildskov)<sup>[6]</sup>等重新研究了嵌在铁晶格中 $^{232}\text{Th}$   $\alpha$ - $\gamma$ 级联的超精细相互作用。扰动角关联技术还和脉冲束核磁共振相结合,在高精度超精细测量方面开展了广泛的工作,1966年马修斯(Matthias)等<sup>[7]</sup>用此方法第一次对 $^{100}\text{Rh}$ 的235毫微秒半寿命的态作了测量,克里斯琴森(Christiansen)等<sup>[8,9]</sup>也作了进一步研究。日本的一个小组<sup>[10]</sup>用此方法开展了 $^{10}\text{B}$ 和 $^{12}\text{N}$ 在面心立方金属中的定位工作,并测量了短寿命 $\beta$ 衰变核的核磁矩,其精度达0.1%。

在六十年代和七十年代,扰动角关联方法有了显著的发展,出现了核磁共振扰动角关联(NMR-PAC)、离子注入扰动角关联(IMPAC)和频闪观测扰动角分布(SOPAD),第一

次可以实验上测量寿命  $10^{-6}$ — $10^2$  秒范围内的同质异能态，填充了利用放射性衰变源寿命标度的空白。另外利用加速器产生的脉冲束，通过核反应和库仑激发所产生的粒子- $\gamma$  和  $\gamma$ - $\gamma$  扰动角关联，研究高角动量和高激发态能级的特性。而且由于核反应和库仑激发产生了一定的反冲能量，能够把这些生成核注入到各种将要研究的材料中去。于是每个核在原则上都可作为一个探针核来研究物质的微观特性。

利用超精细场的扰动角关联，早期工作重点是研究激发核态的特性，为核结构研究提供实验数据。六十年代后逐渐向边缘学科的应用研究扩展。目前这项核技术已应用于固体物理、磁学、生物学、化学及原子物理等许多领域的研究中，并已取得了一些很有意义的成果。扰动角关联技术正在不断地发展成为某些学科的新的实验方法，因而这项核技术正在引起更多科学工作者的重视。

## § 1.2 与其它超精细相互作用 方法的比较

第一个扰动角关联实验是在发现穆斯堡尔效应(1957年)很久以前做的。然而穆斯堡尔效应的应用在整个物理、化学界是众所周知的，而且穆斯堡尔谱仪已成为一种商品，可在国际市场上很容易买到，并已广泛地应用于化学、固体物理、生物学、地质等方面的研究工作。但扰动角关联方法的应用没有开展得如此广泛，而且部分应用研究，如用于生物大分子范围的研究尚且处于探索阶段。虽然扰动角关联理论基本上已完善，测量用的时间微分扰动角关联装置已有了很好的发展，然而今天不可能购置一个成套的扰动角关联谱仪，只

能选购标准的商用电子仪器自己来装配。

近年来,扰动角关联方法用于化学、生物学及固体研究的论文数量的增加值得注意,并在这些领域的应用中显示着独特的优点,因而扰动角关联方法发展前景是美好的。

研究超精细相互作用的方法主要有穆斯堡尔效应、核磁共振、核取向及扰动角关联等,这些不同的方法随着研究对象的不同各有其优缺点和适用条件。在表 1.1 中列举了不同超精细研究方法所用探针核的寿命适用范围。

表 1.1 各种超精细相互作用方法要求的核态寿命

| 超精细相互作用方法  | 核 寿 命 ( $\tau$ )                        |
|------------|-----------------------------------------|
| 穆斯堡尔效应     | $10^{-10}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^{-5}$ 秒 |
| 核磁共振       | $10^{-3}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^2$ 秒     |
| 核取向        | $10^3$ 秒 $\leq \tau \leq 10^{10}$ 秒     |
| 积分扰动角关联    | $10^{-12}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^{-9}$ 秒 |
| 时间微分扰动角关联  | $10^{-9}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^{-6}$ 秒  |
| 核磁共振-扰动角关联 | $10^{-6}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^2$ 秒     |
| 频闪观测扰动角分布  | $10^{-8}$ 秒 $\leq \tau \leq 10^{-2}$ 秒  |

扰动角关联方法与其它方法相比较,在某些方面有明显的优点,例如:

(1) 它所研究的介质不仅可以是固体,而且也可以是液体和气体。

(2) 它可以应用在任何温度下,而且有高的灵敏度,所用的源强一般只需  $10-10^2$  微居里。

(3) 由于频闪观测扰动角分布和核磁共振扰动角关联技术的出现,扰动角关联所研究的核态寿命可以从  $10^{-12}-10^2$  秒这样广的范围。

(4) 由于离子注入扰动角关联技术的出现,原则上每个核都可作为一个探针核。

但做扰动角关联实验也并非容易的,它要求把放射性同位素标记在被研究的特定的分子部位上,或把放射性同位素掺杂到被研究的固体中去,所以在实际应用中不仅要掌握扰动角关联实验方法,还要掌握各类待测样品的制备方法。

347050

## 第二章 扰动角关联原理

### § 2.1 角关联及扰动角关联

放射性原子核放射  $\gamma$  光子或其它粒子的发射几率往往和原子核自旋轴有一定的方向关联。可是利用一般放射源进行观察时, 观察不到辐射的这一关联, 这是因为放射源中的原子核一般是杂乱取向的。由于原子核自旋取向杂乱, 各个原子核辐射的角分布叠加在一起, 其结果整体上形成各向同性的效果。为了观察辐射对自旋的角分布, 首先得把原子核排列起来。这并不是容易做到的, 但我们也可以从放射源中选择自旋轴取向于某一固定方向的原子核进行辐射角分布的观察。 $\gamma$ - $\gamma$ 角关联就是这样的一类实验。

如果一个放射性原子核级联放出两个  $\gamma$  光子(见图 2.1), 我们在某一固定方向观察  $\gamma_1$ , 同时测量  $\gamma_1$  与  $\gamma_2$  的符合发射几率, 就会发现这一过程的几率  $W(\theta)$  随着发射两个  $\gamma$  光子

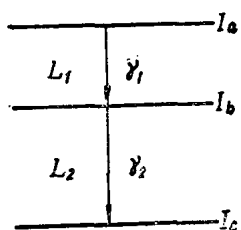


图 2.1  $\gamma$ - $\gamma$  级联跃迁图

方向之间的夹角  $\theta$  不同而呈现出各向异性的变化。在一定方向观察  $\gamma_1$ , 也就是选取一群自旋取某一固定方向的原子核, 而  $\gamma_2$  对  $\gamma_1$  的角分布将这些核多极辐射的各向异性表现了出来, 这个方法称为  $\gamma$ - $\gamma$  角关联。

对于一个无场的空间,描写 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 之间角关联的一种方便形式是

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=2,4,\dots} A_k P_k(\cos\theta) \quad (2.1)$$

$P_k(\cos\theta)$ 是勒让德多项式。 $W(\theta)$ 称为角关联函数,表示 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 之间夹角为 $\theta$ 的相对辐射几率。系数 $A_k$ 由三个级联跃迁能级的自旋(初态 $I_a$ ,中间态 $I_b$ 和末态 $I_c$ )和 $\gamma$ 辐射的多极级所决定。 $k$ 的最大值 $k_{\max}$ 是 $(2I_b, 2L_1, 2L_2)$ 中的最小值,而且是必须大于零的偶数。 $L_1$ 和 $L_2$ 分别为 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 电磁辐射的多极级。

$\gamma_1$ - $\gamma_2$ 角关联实验要求对 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 同时观察。但是,一个原子核极联发射 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 之间不管如何短暂,在时间上总是有先后的。因而在放射 $\gamma_1$ 和 $\gamma_2$ 过程的短暂瞬间,或中间核态寿命 $\tau$ 时间内,若原子核处于有场的空间,那么原子核的磁矩(或电四极矩)将与周围介质中存在的磁场(或电场梯度)相互作用,这些作用可谓超精细相互作用,使核矩绕着这些外场旋进,于是相应的角关联被扰动,此时测得的角关联为扰动角关联。扰动角关联函数可用以下半经典图象进行描述,为清楚起见,以外加磁场为例进行说明。

原子核是一个高速转动的带电体,它具有自旋、角动量,因而也具有磁矩。由经典力学知道,一个高速转动的物体,在外力作用下,其自旋轴将绕外力方向旋进。陀螺在重力作用下的进动现象就是一个常见的例子。同样核磁陀螺也会产生这种现象,当原子核在中间态寿命 $\tau$ 时间内,若受到外磁场 $H$ 的作用,原子核将绕 $H$ 进动。所以在 $t$ 时刻衰变的中间态原子核的自旋方向已经转过了 $\Delta\theta =$

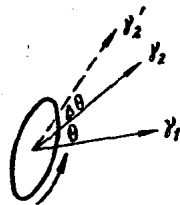


图 2.2 核在磁场中旋进产生的拉莫尔进动角

$\omega_L t$ , 其中  $\omega_L = -g\mu_N H/\hbar$ , 称为拉莫尔进动频率。所以这时的  $\theta$  方向观察到的  $\gamma_2$  已是自旋旋进了  $\Delta\theta$  后的  $\gamma_2$  (见图2.2)。由此可直观地理解, 在外磁场  $H$  作用下的扰动角关联形式(假定磁场垂直于探测器所在平面) 为

$$W(\theta, H, t) = 1 + \sum_{k=2, 4, \dots} A_k P_k(\cos(\theta - \omega_L t)) \quad (2.2)$$

若探测系统分辨时间远大于中间核态寿命  $\tau$ , 即一般所谓积分扰动角关联, 则上式可表示成

$$W(\theta, H) = 1 + \sum_{k=2, 4, \dots} \frac{b_k}{\sqrt{1 + (k\omega_L \tau)^2}} \cos k(\theta - \Delta\theta) \quad (2.3)$$

其中进动角  $\Delta\theta$  由下式给出:

$$\tan k\Delta\theta = k\omega_L \tau \quad (2.4)$$

在  $\Delta\theta$  较小的情况下,  $\Delta\theta \approx \omega_L \tau$ 。而在没有外加磁场作用下相对应的角关联函数可表示为

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=2, 4, \dots} b_k \cos k\theta \quad (2.5)$$

可见, 与无外场的情况相比, 它除了幅度衰减外, 角关联函数曲线将平移一个角度  $\Delta\theta$ 。

以上仅是扰动角关联的一些基本概念, 为了深入了解扰动角关联的原理, 还得对一般情况及某些特殊情况作必要的理论描述。

## § 2.2 扰动角关联理论的一般描述

首先让我们给出通常所采用的没有扰动的角关联公式:

$$W(k_1, k_2, 0) = \sum_{m_i, m_a, m_b, m_{a'}, m_{b'}, m_f} \langle m_f | H_2 | m_b \rangle \times \\ \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \delta_{m_a m_b} \langle m_f | H_2 | m'_b \rangle^* \langle m'_a | H_1 | m_i \rangle^* \delta_{m_{a'} m_{b'}} \quad (2.6)$$

这里  $H_1$  和  $H_2$  只是描述原子核和辐射场之间的相互作用。在不存在核外扰动的情况下，发射第一个辐射后的末态  $\langle m_a |$  和  $\langle m'_a |$  与第二个辐射的初态  $|m_b\rangle$  及  $|m'_b\rangle$  相同。

现在我们假定自旋  $I$  的中间核态存在着和某些核外场之间的相互作用，这些相互作用我们用哈密顿算符来描写。假定这些作用是从发射第一个辐射开始 ( $t=0$ ) 一直到发射第二个辐射的时间  $t$  为止。在这个时间间隔中，在核外扰动的影响下，态  $|m_a\rangle$  变到不同的态  $|m_b\rangle$ 。这些变化可以用一个描写态向量  $|m_a\rangle$  演变的么正算符  $A(t)$  来描写，而且扰动角关联函数可以表示成

$$W(k_1, k_2, t) = \sum_{m_i, m_f} \sum_{m_a, m_{a'}} \langle m_f | H_2 A(t) | m_a \rangle \\ \times \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \langle m_f | H_2 A(t) | m'_a \rangle^* \langle m'_a | H_1 | m_i \rangle^* \quad (2.7)$$

态  $|m\rangle$  形成一个完全系，而且态向量  $A(t) |m_a\rangle$  可以被表示为

$$A(t) |m_a\rangle = \sum_{m_b} \langle m_b | A(t) | m_a \rangle |m_b\rangle \quad (2.8)$$

对  $A(t) |m'_a\rangle$  可作同样的表示。展开系数是时间演变算符  $A(t)$  在  $m$  表象中的矩阵元。

时间演变算符满足薛定格方程

$$\frac{\partial}{\partial t} A(t) = -\frac{i}{\hbar} K \cdot A(t) \quad (2.9)$$

若  $K$  不依赖于时间  $t$  (静的相互作用)，这个方程的解可

简写为

$$A(t) = \exp[-(i/\hbar)Kt] \quad (2.10)$$

对于一个依赖于时间的相互作用, 方程 (2.9) 的解可以写成

$$A(t) = \exp[-(i/\hbar) \int_0^t K(t') dt'] \quad (2.11)$$

这里积分应按照费曼(Feynman)的有序算符<sup>[11]</sup>的定理计算。

· 现在扰动角关联可以写成如下形式:

$$\begin{aligned} W(k_1, k_2, t) = & \sum_{m_j, m_i} \sum_{m_a, m_b} \sum_{m_a', m_b'} \langle m_j | H_2 | m_b \rangle \\ & \times \langle m_b | A(t) | m_a \rangle \\ & \times \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \langle m_j | H_2 | m_b' \rangle^* \\ & \times \langle m_b | A(t) | m_a' \rangle^* \langle m_a' | H_1 | m_i \rangle^* \end{aligned} \quad (2.12)$$

我们将矩阵元  $\langle m' | H_i | m \rangle$  代替发射第  $i$  个辐射的通常表示式<sup>[12, 13]</sup>, 并分别对  $m_i$ ,  $m_j$  求和。若我们只限于考虑方向角关联, 我们可以得到

$$\begin{aligned} \sum_{m_i} \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \langle m_a' | H_1 | m_i \rangle^* = & \sum_{L, L'} \sum_{k, N} (-1)^{2I - I_i + m - L'} \\ & \times \begin{pmatrix} I' & I & k \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} I & I & k \\ L & L' & I_i \end{Bmatrix} C_{k_0}(L, L') \langle I \parallel L\pi \parallel I_i \rangle \\ & \times \langle I \parallel L'\pi' \parallel I_i \rangle^* Y_k^{(N)*}(\theta_1, \varphi_1) \end{aligned} \quad (2.13)$$

$C_{k_0}(L, L')$  是辐射多极级  $L$  和  $L'$  的辐射参量。对应于任意选择的量子轴  $z$  的球谐函数幅角  $\theta$  和  $\varphi$  与辐射观察方向有关(图 2.3)。

于是我们得到方向扰动角关联公式:

$$\begin{aligned} W(k_1, k_2, t) = & \sum_{k_1 k_2 N_1 N_2} A_{k_1}(1) A_{k_2}(2) G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) \\ & \times [(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)]^{-1/2} Y_{k_1}^{N_1*}(\theta_1, \varphi_1) Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \varphi_2) \end{aligned} \quad (2.14)$$