

CAPITULO III

El espectro Mössbauer de una muestra en polvo (monocristales pequeños orientados al azar) de un compuesto no magnético sometido a un campo magnético externo, presenta características específicas; lo cual es el resultado de la superposición de infinidad de espectros, cada uno debido a la diferente orientación del campo externo con el eje z (asociado a la componente V_{zz}) en cada monocristal. Por otro lado la intensidad relativa de las líneas que conforman cada uno de estos miniespectros está asociado con la dirección de incidencia de los rayos γ , que no es completamente independiente sino que forma un ángulo fijo con el campo externo (en nuestro caso 90°)

IIIa Interacción hiperfina magnética

A la interacción cuadrupolar eléctrica (intrínseca en cada monocristal de pirita) se une la interacción dipolar magnética al aplicar un campo \vec{H} externo. La suma de éstas se expresa mediante el siguiente Hamiltoniano:

$$\mathcal{H} = -\vec{\mu}_n \cdot \vec{H} + Q \cdot \nabla E \quad (27)$$

Debido a la complejidad de la interacción cuadrupolar, el sistema de referencia adecuado es aquel en el cual el eje z' corresponda a la dirección de $V_{z'z'}$ (tensor gradiente diagonalizado). Por otro lado, dado que dicho tensor

en la pirita tiene simetría axial, podemos escoger la dirección del campo externo comprendida en el plano $X'Z'$ (ver figura # 4)

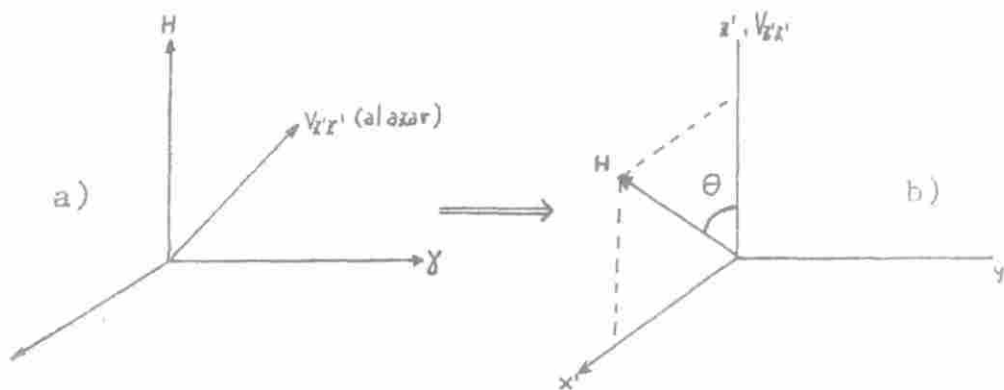


Figura #4 a) sistema de coordenadas del lab.
b) en cada monocristal

En este sistema el campo magnético :

$$\vec{H} = H_0(\sin \theta \hat{i} + \cos \theta \hat{j}) \quad (28)$$

y el Hamiltoniano:

$$\mathcal{H} = \frac{e^2 \nu Q}{4I(2I-1)} (3I_z^2 - I^2) - g_z \beta_n H_0 (I_x \cos \theta + \frac{1}{2}(I_+ + I_-) \sin \theta) \quad (29)$$

En el estado fundamental del núcleo del F_e^{57} ($I=1/2$), se produce un desdoblamiento en dos subniveles cuyos autovalores y autofunciones son:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{F_1} &= -\beta/2 & |F_1\rangle &= \cos \theta/2 |1/2, 1/2\rangle + \sin \theta/2 |1/2, -1/2\rangle \\ \mathcal{E}_{F_2} &= \beta/2 & |F_2\rangle &= -\sin \theta/2 |1/2, 1/2\rangle + \cos \theta/2 |1/2, -1/2\rangle \end{aligned} \quad (30)$$

donde $\beta = g_z \beta_n H_0 = 9.13 \cdot 10^{-25} \text{ erg/gauss } H_0 = 1.056 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mm/seg}}{\text{gauss}} H_0$

En el primer estado excitado ($I=3/2$), se produce un desdoblamiento en cuatro subniveles, cuyos autovalores y autofunciones se pueden calcular al diagonalizar la matriz representada en la tabla # 2. Este tipo de matrices es preferible diagonalizarlas con la ayuda de métodos computacionales, sin embargo el resultado podemos expresarlo de la manera siguiente:

$$\mathcal{E}_{E_n} = \mathcal{E}(n) \quad |E_n\rangle = \sum_{i=1}^4 R(n,i,\theta) |3/2, m_i\rangle \quad n=1,2,3,4 \quad (31)$$

donde $\mathcal{E}(n)$ es la energía del subnivel, $|E_n\rangle$ la autofunción y $R(n,i,\theta)$ coeficientes en la expansión de $|E_n\rangle$ en la base $|3/2, m_i\rangle$

Debido a la mezcla de las funciones $|I, m_i\rangle$ tanto en el estado excitado como en el fundamental, ahora es posible la transición de cada subnivel del estado fundamental a todos los subniveles del estado excitado. Para construir el espectro de absorción teórico, es necesario conocer las probabilidades de transición entre los diversos subniveles, lo cual amerita el estudio de la interacción de los rayos γ con los núcleos.

IIIb Interacción del haz de rayos γ con el núcleo

En la aproximación no relativística una partícula con spin S , interactúa con el campo de radiación $\vec{A}(r)$ mediante el siguiente Hamiltoniano:

$$\mathcal{H}_{int} = \frac{1}{2m} (\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A})^2 + g_s \beta_1 \vec{S} \cdot \vec{H} \quad (32)$$

despreciando el término en A^2 podemos reescribirlo, tomando en cuenta solo la parte de radiación:

$$\mathcal{H}_{int} = -\frac{e\hbar}{2mc} \left[2g_1 \vec{p} \cdot \vec{A}(r) + g_2 \vec{s} \cdot \nabla \times \vec{A}(r) \right] \text{ para cada nucleón } \quad (33)$$

donde:
$$g_1 = \begin{cases} 1 & \text{para protón} \\ 0 & \text{para neutrón} \end{cases}$$

En segunda cuantificación el campo de radiación electromagnético se describe mediante el vector potencial \hat{A} [8]:

$$\hat{A} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{L^3}} \sum_{n,k} \frac{1}{\sqrt{k}} \left(\vec{\epsilon}_{kn} a_{kn} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \vec{\epsilon}_{kn}^* a_{kn}^* e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} \right) \quad (34)$$

$n = \pm 1$

en el cual a_{kn}^* y a_{kn} son los operadores de creación y aniquilación respectivamente. Mediante esta descripción la interacción radiación-nucleón es:

$$\mathcal{H}_{int} = \text{Cste} \sum_{n,k} \frac{1}{\sqrt{k}} \left[2g_1 \vec{p} \cdot \vec{\epsilon}_{kn} + g_2 \vec{s} \cdot (\nabla \times \vec{\epsilon}_{kn}) \right] a_{kn} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + c.c. \quad (35)$$

c.c. = complejo conjugado

En el caso de absorción resonante nuclear (Efecto Mössbauer) nos interesa fotones con energía E definida (k definido) y tomamos solo en cuenta procesos de absorción, lo cual corresponde a la primera parte del Hamiltoniano de la ecuación (35). Podemos reemplazar la onda plana $\vec{\epsilon}_{kn} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ por su desarrollo en armónicos vectoriales, en el sistema de coordenadas con $\vec{k} \parallel \vec{z}$ [9]:

$$\vec{\epsilon}_n e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} = -\frac{1}{\sqrt{2}} \sum_J (n \vec{A}_{Jn}^m + \vec{A}_{Jn}^e) \quad n = \pm 1 \quad (36)$$

Los \vec{A}_{JM}^e son los armónicos vectoriales eléctricos (superíndice e) y los \vec{A}_{JM}^m los magnéticos (superíndice m) definidos como :

$$\begin{aligned} A_{JM}^e &= \frac{1}{k\sqrt{J(J+1)}} \nabla \times \vec{L} \varphi_{JM}(r, \theta, \phi) \\ A_{JM}^m &= \frac{1}{\sqrt{J(J+1)}} \vec{L} \varphi_{JM}(r, \theta, \phi) \end{aligned} \quad (37)$$

con $\varphi_{JM} = j_J(kz) Y_{JM}(\theta, \phi)$

$$j_J = \left(\frac{\pi}{2kz} \right)^{1/2} J_{J+1/2}(kz) \quad \text{función de Bessel esférica}$$

En el sistema de coordenadas general donde k se ubica con (α, β) figura # 5, el desarrollo de onda plana con $\vec{k} \parallel \vec{z}'$ es

$$\vec{e}_n e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = -\frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{JM} (n \vec{A}_{JM}^m + \vec{A}_{JM}^e) \mathcal{D}_{Mn}^J \quad (38)$$

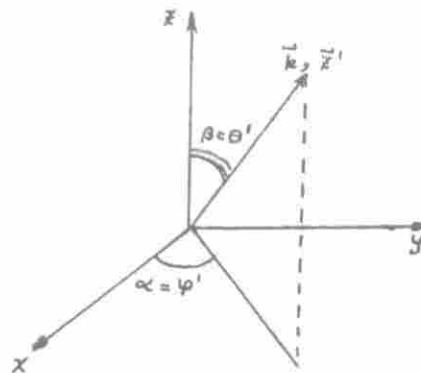


Figura #5 Dirección arbitraria de \vec{K} definida por los ángulos (α, β)

La relación precedente se obtiene de (36) por rotación $R(\alpha, \beta, \gamma)$, que transforma los ejes (x, y, z) en ejes (x', y', z') con $k \parallel z'$, (α, β, γ) son los ángulos de Euler $\alpha = \varphi'$, $\beta = \theta'$, $\gamma = 0$ en (37), los D_{Mn}^J son:

$$D_{Mn}^J(\alpha, \beta, 0) = -\sqrt{\frac{8\pi}{J(J+1)(2J+1)}} L_{-n} Y_{JM}(\theta', \varphi') \quad (39)$$

De acuerdo a la relación (35) y usando el desarrollo (38) la interacción nucleo-radiación es:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{int} = \text{Cste} \sum_{n: \text{nucleones}} \sum_{J, M, n} \left[2 g_{s, q} \vec{p}_i \cdot (n \vec{A}_{JM}^m + \vec{A}_{JM}^e) + \right. \\ \left. g_{s, q} \vec{S} \cdot \nabla \times (n \vec{A}_{JM}^m + \frac{1}{k} \vec{A}_{JM}^e) \right] D_{Mn}^J(R) \alpha_{kn} \end{aligned} \quad (40)$$

Utilizando la forma explicita de \vec{A}_{JM}^m (37) y la aproximación de gran longitud de ondas: $kr \ll 1$ (pues $r \approx 10^{-15}$ m y $k \approx 10^{11}$ m⁻¹) en $f_J(kr)$

$$\text{para } kr \ll 1 \quad f_J(kr) \approx \frac{(kr)^J}{(2J+1)!!} \quad (41)$$

se obtiene:

$$\vec{A}_{JM}^m = \frac{(ik)^J}{(2J+1)!!} \frac{i}{J(J+1)} \vec{\nabla} (\vec{r} Y_{JM}(\theta, \varphi)) \times \vec{r} \quad (42)$$

sustituyendo en la relación (40) y reordenando, podemos expresar la interacción como:

$$\mathcal{H}_{int} = \text{Cste} \sum_{JnM} \left[\alpha_J^e (Q_{JM} + Q'_{JM}) + n \alpha_J^m (M_{JM} + M'_{JM}) \right] D_{Mn}^J(R) \alpha_{kn} \quad (43)$$

donde los Q_{JM} y Q'_{JM} son la parte orbital y de spin del mo-

mento 2^J polar eléctrico y los M_{JM} y M'_{JM} la parte orbital y de spin del momento 2^J polar magnético del núcleo definidos como:

$$\begin{aligned}
 Q_{JM} &= -2 \frac{e}{k} \sum_{\mathcal{Z}} g_{\mathcal{Z}2} \vec{\nabla} (r_{\mathcal{Z}}^J Y_{JM}) \cdot \vec{p}_{\mathcal{Z}} \\
 Q'_{JM} &= -\frac{k}{J+1} \sum_{\mathcal{Z}} g_{\mathcal{Z}2} \vec{L} (r_{\mathcal{Z}}^J Y_{JM}) \cdot \vec{s}_{\mathcal{Z}} \\
 M_{JM} &= 2 \frac{1}{J+1} \sum_{\mathcal{Z}} g_{\mathcal{Z}2} \vec{\nabla} (r_{\mathcal{Z}}^J Y_{JM}) \cdot \vec{\ell}_{\mathcal{Z}} \\
 M'_{JM} &= \sum_{\mathcal{Z}} g_{\mathcal{Z}2} \vec{\nabla} (r_{\mathcal{Z}}^J Y_{JM}) \cdot \vec{s}_{\mathcal{Z}}
 \end{aligned}
 \tag{44}$$

$\mathcal{Z} = \text{nucleón}$
 $\vec{\ell}_{\mathcal{Z}} = \vec{r}_{\mathcal{Z}} \times \vec{p}_{\mathcal{Z}}$

por otro lado los α_J^{em} son constantes que dependen de J

Dado que los momentos multipolares son tensores esféricos de rango J podemos reagruparlos en dos términos (eléctrico y magnético):

$$\begin{aligned}
 T_{JM}^e &= \alpha_J^e (Q_{JM} + Q'_{JM}) \\
 T_{JM}^m &= \alpha_J^m (M_{JM} + M'_{JM})
 \end{aligned}
 \tag{45}$$

por lo tanto la interacción de un núcleo con un campo de fotones propagándose según \vec{k} con polarización n es:

$$\mathcal{H}_{int} = \text{Cste} \sum_{JMK\kappa n} n^{\kappa} T_{JM}^{(\kappa)} \mathcal{D}_{Mn}^J(R) a_{kn} \tag{46}$$

$n = \pm 1$ (polarización circular derecha o izquierda)
 $\kappa = 0$ radiación eléctrica
 $\kappa = 1$ radiación magnética

Ahora podemos calcular las probabilidades de transición del núcleo a través del acoplamiento con la radiación. Para ello necesitaremos los elementos de matriz de \mathcal{H}_{int} entre estados $|\text{núcleo}\rangle | \text{fotón}\rangle$. En el caso de absorción de $r_{\mathcal{Z}}$

diación circularmente polarizada

$$\langle \nu | \langle 0 | \mathcal{H}_{int} | 1_{kn} \rangle | \mu \rangle \quad (47)$$

donde $|\mu\rangle$ contiene al estado fundamental y $|\nu\rangle$ al estado excitado

$$S_{\mu\nu}(kn) = \text{Cste} \sum_{JMK} n^{\pi} \langle \nu | T_{JM}^{(n)} \mathcal{D}_{MK}^J | \mu \rangle \langle 0 | a_{kn} | 1_{kn} \rangle \quad (48)$$

En la transición del estado fundamental al primer estado excitado del Fe^{57} (14.4 Kev), solo se absorbe radiación dipolar magnética (M1) en la cual $J=1$ y paridad par, por lo tanto la probabilidad de transición entre los estados $|\mu\rangle$ a $|\nu\rangle$ es:

$$W_{\mu\nu} = \left\{ \left| \sum_M \langle \nu | T_{1M}^m | \mu \rangle \mathcal{D}_{M,1}^1 \right|^2 + \left| \sum_M \langle \nu | T_{2M}^m | \mu \rangle \mathcal{D}_{M,-1}^2 \right|^2 \right\} \text{Cste} \quad (49)$$

Siendo los T_{1M}^m tensores esféricos, podemos hacer uso del teorema de wigner-Eckart. Sabiendo que el estado fundamental tiene $I=1/2$ y el excitado $I=3/2$ el elemento de matriz entre cualesquiera subniveles es:

$$\langle 3/2 \ m_{3/2} | T_{2M}^m | 1/2 \ m_{1/2} \rangle = \langle 1/2 \ 1 \ m_{1/2} \ M | 3/2 \ m_{3/2} \rangle \mathbb{T}_{1/2 \ 3/2} \quad (50)$$

el primer término del lado derecho es el coeficiente de Clebsch-Gordan correspondiente y el segundo término es el elemento de matriz reducido que solo depende de los momentos $I_1 = 1/2$ (fundamental) $I_2 = 3/2$ (excitado) y $J=1$ (fotón) y es común para los diversos m_x .

IIIc Forma de línea Mössbauer (teórica)

Puesto que en nuestro caso, el campo magnético externo no es siempre perpendicular al haz de rayos gamma, para una orientación dada del campo magnético respecto al eje z, la relación entre los ángulos (θ', φ') de orientación del γ respecto al eje z y los ángulos (θ, φ) de orientación con respecto al campo magnético es (ver figuras # 5 y # 6):

$$\begin{aligned} \cos \theta' &= -\cos \varphi \sin \theta \\ \sin \varphi' &= \frac{\sin \varphi}{\sqrt{1 - \cos^2 \varphi \sin^2 \theta}} \end{aligned} \quad \mathcal{J} = \frac{-\cos \varphi}{\sqrt{1 - \cos^2 \varphi \sin^2 \theta}} \quad (51)$$

y el ángulo sólido

$$d\Omega = \sin \theta' d\theta' d\varphi' = \sin \theta' \mathcal{J}(\theta, \varphi, \theta', \varphi') = \cos \varphi d\theta d\varphi$$

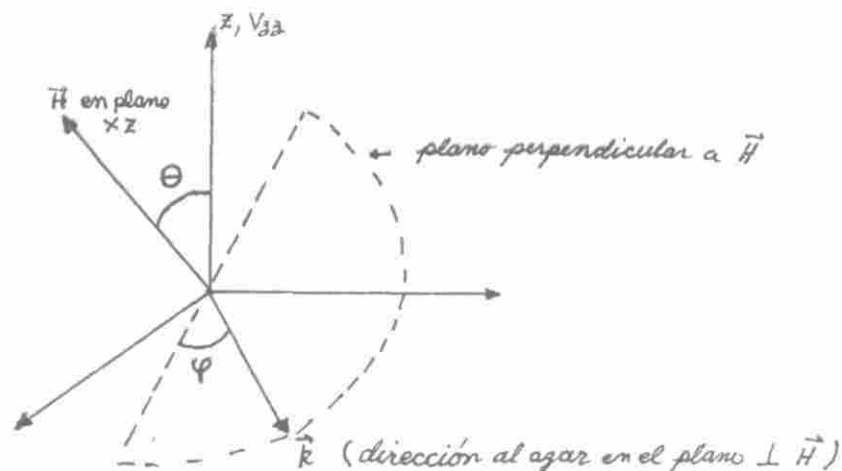


Figura # 6 Dirección del rayo γ con respecto al campo magnético y al eje z

Por lo tanto la forma del espectro Mössbauer será la siguiente:

$$A(\varepsilon) = \text{Cste} \sum_{\mu, \nu} \int_0^{\pi} \frac{d\theta}{(\varepsilon - (\varepsilon_{\nu}(\theta) - \varepsilon_{\mu}(0)))^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \int_0^{2\pi} W_{\mu\nu}(\theta, \varphi) \cos \varphi d\varphi \quad (52)$$

En el apéndice #3, se encuentra listado el programa de computación que permite calcular tanto los estados $|\mu\rangle$ y $|\nu\rangle$ como la forma de línea Mössbauer

Para cada línea individual se ha supuesto que su forma es de una Lorenziana y que el ancho de la línea es igual para todas.