Volume 28 (2020) 27-35

# Elargissement du spectre Mössbauer dû aux noyaux résonnants dans la source

Bernard Nahimana<sup>1</sup>, Thaddée Barancira<sup>1</sup> & Jos Odeurs<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Université du Burundi, Faculté des Sciences, B.P. 2700, Bujumbura - BURUNDI

<sup>2</sup> Katholieke Universiteit Leuven, IKS, Celestijnenlaan 200 D, B-3001, Leuven, BELGIQUE.

E-mail: thaddee.barancira@ub.edu.bi

Received: January 2013 Accepted for publication: on August 30<sup>th</sup>, 2013 Published online for the first time: on March 6<sup>th</sup>, 2020

### Abstract

The quantum mechanical model for resonant nuclear scattering of gamma radiation is used to study the modification of the photon wave function created by the presence of absorber nuclei. In fact, a Mössbauer nucleus excited in the source deexcites spontaneously and can emit gamma radiation, i.e. a  $\gamma$ -photon. This photon can undergo resonant diffusions because of the presence of the absorber nuclei. The maximum number of diffusions will depend on the relative position of the source nucleus with respect to the resonant nuclei still in the ground state in the source.Furthermore, we consider a Mössbauer source, an absorber and a detector located on a same axis called the forward direction. The radiation emitted in the forward director. These multiple scattering events modify the emission spectrum of the source, which would correspond to a simple lorentzian distribution in the absence of diffusion.

Keywords: Mossbauer effect, nuclear source, resonant nuclei, resonant absorption, recoil free absorption

### Résumé

Le modèle de la mécanique quantique pour la diffusion nucléaire résonnante du rayonnement gamma nous permettra d'étudier la modification de la fonction d'onde d'un photon gamma due à la présence de noyaux absorbeurs.

Un noyau Mössbauer excité dans la source se désexcite en émettant un rayonnement gamma. Ce photon gamma se propage et peut subir plusieurs diffusions résonnantes si des noyaux identiques au niveau fondamental sont présents dans la source. Le nombre maximum de diffusions possibles dépendra de la position du noyau source par rapport à ces noyaux résonnants à l'état fondamental.

Par la suite, nous considérons une source Mössbauer, un absorbeur et un détecteur se trouvant sur le même axe ; cet axe est appelé la direction vers l'avant. Dans ce cas, la radiation émise vers l'avant à partir d'un noyau de la source peut rencontrer, aussi bien à l'intérieur de la source que dans l'absorbeur, beaucoup de noyaux résonnants à l'état fondamental, avant d'atteindre le détecteur. Ces processus de diffusion multiples modifient le spectre d'émission, qui correspondrait à une distribution lorentzienne si ces diffusions étaient absentes.

Keywords: effet Mössbauer, noyau source, noyau résonant, absorption résonante, absorption sans recul

### 1. Introduction

L'effet Mössbauer est l'émission et l'absorption sans recul d'un photon gamma par des noyaux de même nature. Pour que ceci soit possible, il est nécessaire que les noyaux soient incorporés dans un réseau (cristallin). Une technique spectroscopique s'est développée sur base de cet effet et porte le nom de spectroscopie Mössbauer. Les chercheurs Hamermesh [1], Harris [2] et Hoy [3] pour ne citer que ceux-là, ont étudié les propriétés du rayonnement gamma transmis à travers un absorbeur résonnant. Ils ont utilisé respectivement le modèle de l'optique classique et le modèle de la mécanique quantique via les méthodes mathématiques développées par Heitler [4] et ils ont trouvé les mêmes résultats numériques pour les propriétés du rayonnement gamma transmis, quoique les méthodes utilisées soient très différentes.

Dans cet article nous allons étudier à l'aide d'une approche de la mécanique quantique ce problème où le noyau source émet un rayonnement gamma qui interagit avec des noyaux résonnants à l'état fondamental se trouvant dans le réseau (cristallin) où se trouve le noyau source, avant de passer à travers un «vrai» absorbeur Mössbauer pour atteindre le détecteur. Nous allons voir que les processus de diffusions dans la source produisent un élargissement du spectre dont on devrait tenir compte dans l'analyse des spectres Mössbauer.

La transition Mössbauer que nous allons considérer est la transition entre le premier état excité de  ${}^{57}Fe$  et l'état fondamental, correspondant à une différence d'énergie de 14,4 keV (Fig. 1).

La méthode des coïncidences et du précurseur va déterminer l'instant de la formation du noyau dans son premier état excité. Cet instant définit le temps t = 0. La source de <sup>57</sup>*Fe* de la spectroscopie Mössbauer est le <sup>57</sup>*Co*, qui subit une capture électronique, ce qui donne naissance à un état métastable du <sup>57</sup>*Fe* qui, en retour, se désintègre vers l'état fondamental via une cascade de transitions gamma, dont la transition Mössbauer 14,4keV.

Sur la figure, les demi-vies des niveaux nucléaires sont indiquées par les symboles  $T_{1/2}$ ; tandis que les demi-entiers 1/2, 3/2, 5/2 désignent les spins nucléaires.

La désintégration radioactive du noyau peut se faire également par conversion interne [5], où l'énergie nucléaire est transférée directement à un électron atomique, donc sans la production d'un photon gamma. Ce phénomène contribuera à l'élargissement des niveaux nucléaires.

L'électron produit ainsi est appelé électron de conversion et il possède une énergie cinétique déterminée, égale à la différence de l'énergie nucléaire et de l'énergie de liaisonatomique de l'électron. Pour notre analyse nous allons considérer les deux modes de désintégration.



**Figure 1 :** Schéma de la désintégration nucléaire du <sup>57</sup>Co montrant la transition accompagnée d'une émission du photon  $\gamma$  avec une énergie de 14,4 keV.

Lors d'une conversion interne, un transfert direct d'énergie s'opère entre l'électron et le noyau, ce qui conduit à l'expulsion de l'électron ayant reçu le surplus d'énergie.

Pour des temps longs par rapport à la demi-vie du niveau nucléaire instable, la densité de probabilité de trouver un photon émis par ce noyau décrit un profil de Lorentz avec une largeur déterminée par le temps (relation d'incertitude temps-énergie). Cette largeur est appelée la largeur naturelle. Une analyse récente des aspects de cette largeur naturelle, ainsi que la façon dont elle change avec le temps, peut être trouvée dans la référence [6]. Nous allons voir que les diffusions multiples des rayons  $\gamma$  produisent des largeurs qui diffèrent de cette largeur naturelle.

### 2. Modèle de la mécanique quantique pour la diffusion du rayonnement gamma

### 2.1. Approche de la mécanique quantique

La méthode générale utilisée dans notre cas a été introduite par Harris [2], se basant sur une approche due à Heitler [4]. Hoy [3] a raffiné la méthode et l'a rendue opérationnelle pour traiter une variété de cas pratiques.

La méthode applique la théorie des perturbations de la mécanique quantique dans le domaine des fréquences, pour obtenir une série d'équations linéaires couplées.

Nous considérons le système suivant: un noyau source à l'état excité à l'instant t=0 (plus tard ce temps initial sera spécifié), des noyaux absorbeurs, initialement à l'état fondamental, des photons gamma et des électrons de conversion.

Le hamiltonien du système est divisé en deux parties :

 $H_0$ , le hamiltonien non perturbé (qu'on aurait si le système n'interagissait pas avec un photon) correspondant aux états nucléaires et au champ de rayonnement libre, en tant qu'ondes planes.

 $H_{int}$ , le hamiltonien d'interaction (qui décrit le couplage des états de base) qui décrit des transitions entre les états

propres  $|\phi_m(0)\rangle$  de  $H_0$  en permettant aux noyaux d'absorber et d'émettre le rayonnement.

Dans l'approche standard, l'état du système  $|\Psi(t)\rangle$  peut être exprimé par:

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{m} a_{m}(t)e^{-i\left(\frac{E_{m}t}{\hbar}\right)} |\phi_{m}(0)\rangle, \qquad (1)$$

où  $|\phi_m(0)\rangle$  est l'état propre de  $H_0$  correspondant à l'énergie  $E_m$ . La résolution de l'équation de Schrödinger conduit à une série d'équations linéaires couplées pour les coefficients  $a_m(t)$  [7].

$$i\hbar\frac{d}{dt}a_{p}(t) = \sum_{m}a_{m}(t)e^{-i\left[\left(\omega_{m}-\omega_{p}\right)t\right]}\left\langle\phi_{p}(0)\right|H_{\text{int}}\right|\phi_{m}(0)\right\rangle$$
(2)

La condition initiale du système est  $|\Psi(t=0)\rangle = |\varphi_{\ell}(0)\rangle$ qui correspond au noyau dans l'état excité, les noyaux absorbeurs dans l'état fondamental, aucun photons ni électrons de conversion présents. On a la condition supplémentaire où tous les coefficients sont nuls pour t < 0. Ceci peut être réalisé car avec la méthode des coïncidences et du précurseur, il est possible de déterminer exactement le temps de formation du niveau excité de 14,4 keV. Donc avant t=0, l'état excité en question n'est pas peuplé et, par conséquent, a une amplitude de probabilité nulle.

Par conséquent, l'amplitude de probabilité de l'état initial  $|\varphi_{\ell}(0)\rangle$  présente une discontinuité pour t = 0.

Mathématiquement, nous allons décrire cette discontinuité.

L'équation pour  $a_{\ell}(t)$  associée à l'état initial  $|\varphi_{\ell}(0)\rangle$  est (2) (avec l'indice  $\ell$  au lieu de p)

$$i\hbar \frac{da_{\ell}(t)}{dt} = \sum_{m} a_{m}(t) e^{i[(\omega_{\ell} - \omega_{m})t]} \langle \varphi_{\ell}(0) | H_{\text{int}} | \varphi_{m}(0) \rangle$$
(3)

si nous ne tenons pas compte de la discontinuité à l'instant t = 0. Si  $a_{\ell}(t)$  saute brusquement de la valeur 0 à la valeur 1 à l'instant t = 0, nous devrons décrire ce saut comme un terme dans l'équation différentielle pour  $a_{\ell}$ . Une fois que le système se trouve dans l'état  $|\varphi_{\ell}(0)\rangle$ , il continue d'évoluer suivant l'équation (3). Essayons l'équation différentielle

$$i\hbar \frac{da_{\ell}(t)}{dt} = i\hbar\delta(t) \tag{4}$$

pour décrire seulement le saut.  $\delta(t)$  est la "fonction delta" de Dirac.

Intégrons cette équation:

$$a_{\ell}(t) = \int_{-\infty}^{t} \delta(t') dt'$$
Si  $t < 0, \ \delta(t') = 0$  et donc  $a_{\ell}(t) = 0$ .
(5)

Si t > 0, l'intervalle d'intégration contient  $\delta(t')$  et nous savons que  $\int_{-\infty}^{+\infty} \delta(t') dt' = 1$  (nous pouvons remplacer t par  $+\infty$  car  $\delta(t')$  est nulle partout sauf dans une région concentrée autour de t = 0). Donc,  $a_{\ell}(t) = 1$  pour t > 0, aussi pour  $t = 0^+$ . Ceci montre que l'équation (4) décrit correctement la discontinuité. Nous ajoutons donc le terme  $i\hbar \delta_{p\ell} \delta(t)$  dans l'équation (2) où le delta de Kronecker tient compte de la condition initiale : pour  $t = 0^+$  le système se trouve dans l'état  $|\varphi_{\ell}\rangle$  et la "fonction delta" de Dirac décrit correctement la discontinuité de  $a_{\ell}(t)$  pour t = 0.

Ainsi, l'équation (2) devient :

$$i\hbar\frac{d}{dt}a_{p}(t) = \sum_{m}a_{m}(t)e^{-i[(\omega_{m}-\omega_{p})t]}\langle\phi_{p}(0)|H_{int}|\phi_{m}(0)\rangle + i\hbar\delta_{p\ell}\delta(t).$$
(6)

Introduisons maintenant une sorte de transformée de Fourier [4]

$$a_m(t) = -\frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty}^{+\infty} A_m(\omega) e^{i(\omega_m - \omega)t} d\omega$$
<sup>(7)</sup>

dans l'équation (6). Nous trouvons après calculs :

$$\left(\omega - \omega_p\right) A_p(\omega) = \sum_m A_m(\omega) \frac{\left\langle \phi_p(0) \middle| H_{\text{int}} \middle| \phi_m(0) \right\rangle}{\hbar} + \delta_{p\ell} \,. \tag{8}$$

Nous aurons un problème si nous divisons par  $(\omega - \omega_n)$ : le membre de droite contient une discontinuité pour  $\omega = \omega_p$ , autrement dit dans le plan complexe de  $\omega$  il y a un pôle  $\omega = \omega_p$ . Pour calculer la contribution du pôle (dans tous les cas, il y aura des intégrales qui interviennent, comme on verra plus tard), nous devons déplacer le pôle d'une quantité infinitésimale. Ce déplacement peut se faire vers le haut (pôle ayant une partie imaginaire positive) ou vers le bas (pôle ayant une partie imaginaire négative). Pour garantir la causalité, c'est-à-dire dans notre cas que l'état de 14,4 keV ne peut être formé avant la production du photon de 122 keV, ce qui définit t=0, nous devons choisir un pôle ayant une partie imaginaire négative. Nous écrivons alors  $\omega - \omega_n + i\varepsilon$ avec  $\varepsilon$  une quantité infinitésimale positive (qui tendra vers zéro plus tard et qui disparaîtra des expressions physiques). L'expression (8) devient alors :

$$\left(\omega - \omega_p + i\varepsilon\right) A_p(\omega) = \sum_m A_m(\omega) \frac{\left\langle \phi_p(0) \middle| H_{\rm int} \middle| \phi_m(0) \right\rangle}{\hbar} + \delta_{p\ell} . (9)$$

### 2.2. Le problème de diffusions multiples de N noyaux

Soit le problème où l'absorbeur polycristallin contient N noyaux résonnant à l'état fondamental et se trouve entre la source et le détecteur, tous placés sur l'axe des abscisses. Ce nombre de noyaux absorbeurs résonnants est en relation avec l'épaisseur de l'absorbeur.

L'épaisseur effective, un nombre sans dimension, est définie par  $\beta = N_0 f \sigma_0 d$ , où  $N_0$  est le nombre de noyaux de <sup>57</sup>  $F_e/cm^3$ , f la fraction sans recul,  $\sigma_0$  la section efficace maximale évaluée à la résonance, d l'épaisseur de l'absorbeur. L'expression explicite pour ce paramètre d'épaisseur nucléaire résonnant N est alors [3] :

$$N = \frac{\beta \Gamma}{2 f \Gamma_r} = \frac{N_0 \sigma_0 \Gamma d}{2 \Gamma_r}$$
(10)

avec  $\Gamma$  la largeur totale, et  $\Gamma_r$  la largeur radiative.  $\Gamma$  est la somme de  $\Gamma_r$  et de la largeur due à la désexcitation par conversion interne,  $\Gamma_c$ .

Maintenant le formalisme développé peut être appliqué pour étudier l'évolution du système au temps t = 0 où seul le noyau source est à l'état excité et N noyaux dans l'absorbeur à l'état fondamental. La figure 2 montre un montage où l'absorbeur est séparé de la source, comme dans le cas de la spectroscopie Mössbauer conventionnelle. La source elle-même peut également contenir des noyaux résonnants à l'état fondamental. C'est ce cas qui sera le sujet de cet article. Mais avant d'y arriver, nous aurons à développer le formalisme général pour l'appliquer au cas qui nous intéresse.

Un photon  $\gamma$  émis par la source peut aller directement au détecteur. Il peut subir également une ou plusieurs diffusions avant d'aller au détecteur. Quand le détecteur détecte un photon, il n'y a aucun moyen de savoir quel processus ce photon a subi. Selon les postulats de la mécanique quantique, il faut considérer tous les processus possibles. A chaque processus correspond une amplitude quantique. L'amplitude totale A est la somme des amplitudes de chaque processus et l'intensité, qui est en relation avec la probabilité de présence du photon, est proportionnelle à  $|A|^2$  et contiendra alors des termes d'interférences entre différents processus.



**Figure 2**: Schéma du montage de la source, de l'absorbeur et du détecteur dans le cas d'un spectromètre Mössbauer conventionnel.

Nous considérons la diffusion vers l'avant de sorte que nous n'avons qu'un problème en une dimension. Pour les électrons de conversion, nous aurions pu prendre trois dimensions mais le résultat restera le même car la seule contribution de ce processus est la production d'une largeur naturelle.

Nous avons cinq amplitudes :

 $A(\omega)$ , le noyau source est situé à l'origine dans l'état excité (énergie  $\hbar \omega_0$ ), tous les autres noyaux absorbeurs sont dans l'état fondamental, aucun photon ou électron de conversion n'est présent;

 $B_k(\omega)$ , tous les noyaux sont dans l'état fondamental, un photon de nombre d'onde k (énergie  $\hbar \omega_k$ ) est présent, pas d'électron de conversion présent;

 $C_m(\omega)$ , seul un noyau absorbeur localisé en  $x = x_m$  est excité (avec une énergie  $\hbar \omega'_0$ ), tous les autres noyaux sont dans l'état fondamental, aucun photon ou électron de conversion n'est présent; si  $\omega_0 = \omega'_0$  on a le cas de la résonance exacte entre le noyau source et les noyaux absorbeurs.

 $D_p(\omega)$ , tous les noyaux sont dans l'état fondamental, un électron de conversion (quantité de mouvement p) provenant du noyau source situé à l'origine est présent; pas de photon présent;

 $E_m(\omega)$ , tous les noyaux sont dans l'état fondamental, un électron de conversion (de quantité de mouvement p) provenant du noyau situé à  $x = x_m$  est présent, pas de photon présent.

En supposant qu'au temps t = 0, le noyau source est à l'état excité, substituons ces amplitudes dans l'équation (9). Nous obtenons la série d'équations linéaires couplées suivante [3]:

$$(\omega - \omega_0 + i\varepsilon)A(\omega) = 1 + \sum_k \frac{B_k(\omega)H_k}{\hbar} + \sum_p \frac{D_p(\omega)H_p}{\hbar}$$
(11)

$$\left(\omega - \omega_k + i\varepsilon\right)B_k(\omega) = \frac{A(\omega)H_k^*}{\hbar} + \sum_m \frac{C_m(\omega)H_k^*}{\hbar}e^{-ikx_m}$$
(12)

$$(\omega - \omega_0' + i\varepsilon)C_m(\omega) = \sum_k \frac{B_k(\omega)H_k}{\hbar} e^{ikx_m} + \sum_p \frac{E_{mp}(\omega)H_p}{\hbar} e^{i\binom{p}{\hbar}x_m}$$
(13)

$$\left(\omega - \omega_p + i\varepsilon\right) D_p(\omega) = \frac{A(\omega)H_p^*}{\hbar}$$
(14)

$$\left(\omega - \omega_p + i\varepsilon\right) E_{mp}(\omega) = \frac{C_m(\omega)H_p^*}{\hbar} e^{-i\left(\frac{p}{\hbar}\right)x_m}.$$
(15)

 $H_k$  et  $H_k^*$  sont les éléments de matrice correspondant respectivement à l'absorption et à l'émission d'un photon. En outre  $H_p$  et  $H_p^*$  sont les éléments de matrice correspondant respectivement à l'absorption et à l'émission de l'électron de conversion.

La signification de ces équations peut être clairement donnée. Considérons d'abord l'équation (11). Dans cette équation l'amplitude qui nous aide à trouver le noyau source excité est  $A(\omega)$ . Puisqu'il en est ainsi à l'instant t=0 cela explique '1' du premier terme du membre de droite. La source peut atteindre l'état excité, en absorbant un photon présent dans l'état fondamental. C'est la signification du deuxième terme du membre de droite, la somme sur k. De même, quand le noyau source est dans l'état fondamental, il peut être excité en absorbant son propre électron de conversion. Puisque le noyau source est à l'origine de nos coordonnées, il n'y a aucun facteur de phase spatial requis. La probabilité que le noyau source absorbe un électron de conversion provenant d'un autre noyau est considérée négligeable, étant donné que cet électron ne se propage pratiquement pas dans le réseau.

Maintenant considérons l'équation (12). C'est l'équation décrivant la situation dans laquelle tous les noyaux sont dans l'état fondamental et il y a seulement un photon présent d'amplitude  $B_k(\omega)$ . Ainsi la source peut émettre un photon; c'est la signification du premier terme du membre de droite. Egalement un noyau absorbeur situé en  $x_m$  peut émettre un photon. Maintenant nous devons mettre le facteur de phase  $e^{-ikx_m}$  représentant le fait que ce photon apparaît en  $x = x_m$  [3].En outre, on doit permettre à n'importe quel autre noyau absorbeur de faire la même chose.

Les trois autres équations peuvent être comprises de la même manière.

Concernant la forme exacte des équations (11)-(15), elles dépendent du type d'interaction entre le champ de rayonnement et le noyau. Dans notre cas c'est une interaction dipolaire magnétique [5], ce qui veut dire que le dipôle nucléaire magnétique interagit avec la composante magnétique du rayonnement. Si l'on avait un dipôle électrique, ce serait semblable mais on aurait alors la composante électrique du rayonnement. Le champ de rayonnement peut être décomposé en ondes planes qui, en trois dimensions, contiennent  $e^{\pm i\vec{k}.\vec{r}}$  où le signe (+) est en relation avec l'absorption et le signe (-) avec l'émission [8]. En fonction de la position du noyau  $x_m$ , on aura donc des termes qui contiennent, en une dimension, des facteurs  $e^{\pm i k x_m}$ . Par exemple le membre de droite de l'équation (12) contient  $e^{-ikx_m}$  car il s'agit de l'émission d'un photon de nombre d'onde k par le noyau se trouvant à la position  $x = x_m$ . Le premier terme du membre de droite décrit

l'émission du photon de nombre d'onde k par le noyau source qui se trouve à l'origine (x = 0).

Les termes avec  $D_m$  et  $E_{mp}$  décrivent les processus de conversion d'électrons qui ne donnent qu'un élargissement,  $\Gamma_c$ , des niveaux nucléaires [3].

Le système d'équations (11)-(15) a été résolu par Hoy [3].

### 2.3. Paquet d'onde diffusé

L'étude que nous allons maintenant entreprendre va nous conduire aux différentes amplitudes qui seront nécessaires pour trouver la fonction d'onde totale.

Le détecteur est localisé à la position x, derrière le dernier noyau absorbeur de sorte que le rayonnement prendra un certain temps pour atteindre le détecteur. Le paquet d'onde correspondant est donné par [3] :

$$\psi_r(x,t) = \sum_k \frac{e^{i(kx-\omega_k t)}}{\sqrt{L}} b_k(t) = \frac{\sqrt{L}}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dk e^{i(kx-\omega_k t)} b_k(t), \qquad (16)$$

où la somme sur k est convertie en une intégrale, suivant une procédure établie [2]. Pour la source, le paquet d'onde est [3]:

$$\psi_{r}^{source}(t) = -i\sqrt{L}\frac{H_{k}^{*}}{\hbar c}e^{-i\left(\omega_{0}-i\left(\frac{r}{2}\hbar\right)\right)\left(t-\left(\frac{x}{c}\right)\right)}\theta\left(t-\frac{x}{c}\right)\theta(x), \quad (17)$$

avec  $\theta\left(t-\frac{x}{c}\right)$  la fonction de Heaviside, qui vaut 0 quand

l'argument est négative et 1 autrement.

Hoy [3] a trouvé que le paquet d'ondes peut s'écrire comme une somme de fonctions d'ondes dépendant du nombre de noyaux absorbeurs qui participent dans les processus de diffusion :

(11)

(11)

$$\psi_{1}(t') = \psi_{r}^{source}(t') + Na_{1}(t') + {N \choose 2}a_{2}(t') + {N \choose 3}a_{3}(t') + \dots + {N \choose N}a_{N}(t')$$
(18)

Quand n = 1, nous avons

$$a_{1}(t') = -i\sqrt{L} \frac{H_{k}^{*}}{\hbar c} \left(-i\left(\Gamma_{t'/2\hbar}\right) e^{-i\left(\omega_{0}-i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)t'} \left[\frac{1-e^{-i\left(\omega_{0}'-\omega_{0}\right)t'}}{\left(\omega_{0}-\omega_{0}'\right)}\right]$$
(19)

et pour n = 2, 3, ..., N

$$a_{n}(t') = -i\sqrt{L} \frac{H_{k}^{*}}{\hbar c} \left(-i\frac{\Gamma_{r}}{2\hbar}\right)^{n} e^{-i\left(\omega_{0}-i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)t'} \times \left[\left(1 - e^{-i(\omega_{0}'-\omega_{0})t'} - e^{-i(\omega_{0}'-\omega_{0})t'}\sum_{p=1}^{n-1} \frac{(-it')^{p}(\omega_{0}-\omega_{0}')^{p}}{p!}\right)(\omega_{0}-\omega')^{-n}\right]$$
(20)

où  $t' = t - \frac{x}{c}$  est le temps mis par le rayonnement du noyau

source pour traverser le matériel résonant jusqu'à une position particulière derrière le dernier noyau absorbeur; c'est-à-dire au détecteur.

La fonction d'onde totale décrivant l'intensité transmise quand la source et les noyaux absorbeurs sont en résonance  $(\omega_0 = \omega'_0)$  est exprimée par :

$$\psi(t') = \psi^{\text{source}}\left(t'\right) \left[1 + \sum_{n=1}^{N} \binom{N}{n} \left(-\frac{\Gamma_{r}t'}{2\hbar}\right) \frac{1}{n!}\right]$$
(21)

Cette équation contient toutes les amplitudes contribuant à la diffusion vers l'avant. En effet, le premier terme du membre de droite montre qu'il y a une amplitude pour que le rayonnement émis par la source atteigne le détecteur sans aucune interaction avec les noyaux absorbeurs.

Explicitement on a (voir (17)),

$$\psi^{\text{source}}(t') = C e^{-i\left(\omega_0 - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)t'} \theta(t') , \qquad (22)$$

où  $\omega_0$  est la fréquence angulaire nucléaire,  $\theta$  est de nouveau la fonction de Heaviside, et C est une constante [9].

Le temps t' varie légèrement pour chaque processus simple du rayonnement parce que chaque noyau absorbeur peut prendre différentes positions relativement au noyau source, mais cette variation est extrêmement petite, surtout quand ces noyaux se trouvent au sein de la source même, le cas que nous allons considérer en détail.

Il y a une amplitude qui contribue au processus de diffusion simple, c'est-à-dire le processus où le rayonnement émis par le noyau source est absorbé et réémis par un noyau absorbeur avant d'atteindre le détecteur.

D'autres amplitudes contribuent à la diffusion double, c'està-dire le rayonnement émis par le noyau source est diffusé par deux noyaux absorbeurs avant d'atteindre le détecteur. Cette amplitude peut se produire en fonction du choix de deux noyaux parmi N noyaux d'où le coefficient binomial (N)

 $\binom{N}{2}$ .

De façon générale,  $\binom{N}{n}$  est le coefficient binomial qui donne

le nombre possible de n diffusions résonnantes. La somme dans les crochets de (21) traduit les amplitudes contribuant à la diffusion multiple. Notons que pour chaque saut (diffusion simple), il y a un déphasage de 180°, le signe moins dans (21), et une probabilité donnée par la largeur radiative  $\Gamma_r/2$ . Enfin les différentes amplitudes sont à considérer dans la constitution de l'amplitude totale.

## 3. Calculs du spectre des fréquences d'émission des noyaux résonnants

On sait que le spectre d'émission de photons par un ensemble de noyaux, si l'on n'a pas de diffusions de ces photons, est une courbe lorentzienne pour des temps longs par rapport à la demi-vie des noyaux.

Nous allons faire des calculs analytiques du spectre de fréquence par rapport aux paramètres Mössbauer pour examiner comment la distribution lorentzienne est modifiée par les diffusions multiples.

### 3.1. Définition exacte du spectre de fréquences

La fonction de corrélation de premier ordre du rayonnement émis par une source et diffusé par des noyaux absorbeurs,  $g(\tau)$  est définie [9] par :

$$g(\tau) = e^{-\left(\omega_0 - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\tau} \left[1 + \sum_{n=1}^{N} {N \choose n} \left(-\frac{\Gamma_r \tau}{2\hbar}\right)^n \frac{1}{n!}\right].$$
 (23)

On définit le spectre des fréquences [8,9] par :

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left[ \int_{0}^{+\infty} g(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \right], \qquad (24)$$

où Re symbolise la partie réelle de l'intégrale de (24). En substituant (23) dans (24), nous obtenons :

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left\{ \int_{0}^{+\infty} e^{-i\left(\omega_{0}-\omega-i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\tau} \left[ 1 + \sum_{n=1}^{N} {N \choose n} \left( -\frac{\Gamma_{r}\tau}{2\hbar} \right)^{n} \frac{1}{n!} \right] d\tau \right\},$$
(25)

où les écarts très courts de temps, que le rayonnement prend pour quitter la source à partir des différents sites de noyaux à la source, ont été négligés.

Les intégrales applicables sont de la forme :

$$I_n = \int_0^{+\infty} e^{-i\left(\omega_0 - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\tau} \tau^n d\tau .$$
 (26)

En utilisant l'équation [10]

$$\int_{0}^{+\infty} e^{-\mu x} x^{n} dx = n! \mu^{-n-1} , \qquad (27)$$

on trouve :

$$I_n = n! \left[ i \left( \omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar} \right) \right]^{-n-1}$$
(28)

## 3.2. Application de la théorie déterminant l'élargissement de la source

Dans le cas présent nous allons voir d'une façon analytique les effets d'élargissement du spectre émis par la source Mössbauer dû à la présence des noyaux résonnants à l'état fondamental dans la source même, aussi appelée effet « auto-absorption ».

En considérant [9] chaque position de  ${}^{57}Co$  ( ${}^{57}Fe$ ) dans la source, nous aurons une valeur différente pour Ncorrespondant au chemin particulier du rayonnement émis à partir de cette position. Le spectre des fréquences de la source de rayonnement sera donné par la somme normalisée des spectres individuels correspondant à chaque position nucléaire. Ici nous n'avons aucun problème avec les effets cohérents en prenant cette somme parce qu'il n'y a pas de cohérence entre les spectres de rayonnement de chaque noyau à la source. Ceci est dû au fait que la position de chaque noyau de  ${}^{57}Co$  ( ${}^{57}Fe$ ) peut être distinguée des autres.

Ensuite, nous avons besoin d'estimer le paramètre d'épaisseur relatif à tous les noyaux de la source, c'est-à-dire le nombre effectif des sites résonnants des noyaux. Ces sites seront occupés par les noyaux de  ${}^{57}Fe$  et  ${}^{57}Co$ . Nous allons considérer un profil plat où les noyaux de  ${}^{57}Fe$  et  ${}^{57}Co$  sont distribués de façon homogène dans le solide dans lequel les novaux sont incorporés. Si les atomes de  ${}^{57}Fe$  et  ${}^{57}Co$  sont introduits simultanément par implantation ionique, en utilisant une énergie d'implantation unique, le profil d'implantation a la forme d'une gaussienne. Cependant, si beaucoup d'énergies d'implantation sont utilisées, un profil relativement plat peut être réalisé. Nous supposons que les noyaux de <sup>57</sup>Co sont très dilués dans la matière solide comparé aux novaux de 57 Fe à l'état fondamental. Ces derniers constituent donc les noyaux absorbeurs et seront responsables de l'auto-absorption dans la source.

Après calcul, le nombre de sites de tous les noyaux de <sup>57</sup>*Fe* à l'état fondamental dans la source pour une concentration des atomes de <sup>57</sup>*Fe* de  $4,2 \times 10^{19}/cm^3$ , est N = 5; ce dernier nombre donne le nombre maximum de diffusions résonnantes. Les valeurs possibles du paramètre N pour ce cas est alors un nombre entier entre 0 et 5:  $0 \le N \le 5$ . Ainsi, il y a six positions « effectives » pour les noyaux de <sup>57</sup>*Co* de la source ; six possibilités correspondant au cas où un noyau de <sup>57</sup>*Co* (<sup>57</sup>*Fe*) occupe un seul site, les autres sites étant occupés par les noyaux de <sup>57</sup>*Fe* majoritaires (dû à la prépondérance des noyaux de <sup>57</sup>*Fe* comme déjà supposé).

Si le noyau de  ${}^{57}Co$  se trouve au site le plus proche du détecteur, le rayonnement émis a la largeur naturelle puisqu'il ne rencontrera aucun noyau résonnant dans l'état fondamental : on a le spectre émis par un noyau excité sans diffusion et ceci est une courbe lorentzienne, comme déjà signalé.

Si le noyau de <sup>57</sup>*Co* se trouve à un site « effectif », qui est déplacé d'une unité de la position considérée ci-dessus, le rayonnement émis à partir de ce noyau de la source pourra interagir avec un noyau de <sup>57</sup>*Fe* à l'état fondamental localisé au site effectif plus proche du détecteur. Le rayonnement provenant de ce noyau de la source sera modifié par l'interaction avec ce noyau résonnant dans l'état fondamental. Le rayonnement des noyaux de <sup>57</sup>*Co* de la source localisés aux quatre autres positions est traité exactement de la même manière.

En analysant également chaque spectre correspondant, le spectre total sera alors donné par [9] :

$$S(\omega) = \frac{\frac{\Gamma}{2\hbar}}{(\omega_0 - \omega)^2 + \frac{\Gamma^2}{4\hbar^2}} + \frac{\Gamma}{(\omega_0 - \omega)^2 + \frac{\Gamma^2}{4\hbar^2}} + \frac{1}{\pi} \left\{ \sum_{n=1}^m {m \choose n} \left( -\frac{\Gamma_r}{2\hbar} \right)^n R_e \left[ i \left( \omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar} \right) \right]^{-n-1} \right\} \right]$$

$$(30)$$

Cette expression donne l'élargissement du spectre des fréquences de façon générale. C'est une expression analytique et exacte, valide pour toutes les concentrations des novaux du 57 *Fe* et épaisseurs de la source.

#### 3.3. Simulations

### 3.3.1. Calcul du spectre des fréquences avec un noyau source et un noyau absorbeur, les deux ayant la même fréquence nucléaire $\omega_0$ .

Les calculs du spectre des fréquences nous donnent pour ce cas

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left\{ \frac{1}{i \left(\omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right)} - \left(-i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right) \left[i \left(\omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right)^2\right]^{-1} \right\}$$
(31)

La forme du spectre de fréquences normalisé est donnée par la figure 3 où l'on a défini la variable  $u = \omega - \omega_0$  (exprimée en s<sup>-1</sup>). La largeur à mi-hauteur a été calculée et vaut  $4,6 \times 10^{-9} eV$ .





Figure 3 : Spectre des fréquences avec un noyau source et un noyau absorbeur

Des spectres analogues peuvent être calculés pour n'importe quel nombre de noyaux absorbeurs. Dans ce qui suivra nous allons généraliser ceci en considérant le cas où le noyau source a une énergie qui diffère (légèrement) de l'énergie des noyaux absorbeurs. Cette situation peut se produire s'il y a un déplacement isomérique [11] des noyaux absorbeurs par rapport aux noyaux sources.

## 3.3.2. Un noyau source avec un noyau absorbeur avec $\omega_0 \neq \omega_0'$

Pour le cas présent, nous aboutissons à l'expression du spectre des fréquences donnée par :

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left\{ \frac{1}{i\left(\omega_0 - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)} - \left(-i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right) \times \cdot \left[\frac{-1}{i\left(\omega_0 - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)}\left(\omega_0' - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\right] \right\}$$
(32)

La forme du spectre de fréquences est donnée par la figure 4 :



**Figure 4**: Spectre des fréquences pour  $\omega_0 \neq \omega'_0$ , avec un noyau source et un noyau absorbeur.

La largeur à mi-hauteur vaut  $4,61 \times 10^{-9}$  eV.

ſ

### 3.3.3. Un noyau source avec deux noyaux absorbeurs

Les calculs nous montrent que le spectre des fréquences est défini par :

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left\{ \frac{1}{i \left(\omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right)} + \sum_{n=1}^{N-2} \left(-1\right)^{n+1} {N \choose n} \left(-i \frac{\Gamma_r}{2\hbar}\right)^n \times \left[\left(i \left(\omega_0 - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\right)^{-1} \left(\omega_0' - \omega - i \frac{\Gamma}{2\hbar}\right)^{-n}\right] \right\}$$
(33)

La forme du spectre de fréquences est donnée par la figure 5 :



**Figure 5**: Spectre des fréquences pour  $\omega_0 \neq \omega'_0$ , avec un noyau source et deux noyaux absorbeurs.

La largeur à mi-hauteur est  $4,63 \times 10^{-9} eV$ .

#### 3.3.4. Un noyau source avec trois noyaux absorbeurs

De la même manière, nous avons la formule du spectre des fréquences donnée par l'expression :

$$S(\omega) = \frac{\operatorname{Re}}{\pi} \left\{ \frac{1}{i\left(\omega_0 - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)} + \sum_{n=1}^{N-3} (-1)^{n+1} {\binom{N}{n}} \left(-i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)^n \left[ \left(i\left(\omega_0 - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)\right)^{-1} \left(\omega_0' - \omega - i\frac{\Gamma}{2\hbar}\right)^{-n} \right] \right\}$$
(34)

La forme du spectre de fréquences est donnée par la figure 6 :



**Figure 6**: Spectre des fréquences pour  $\omega_0 \neq \omega'_0$ , avec un noyau source et trois noyaux absorbeurs

La largeur à mi-hauteur vaut  $4,67 \times 10^{-9} eV$ .

#### 3.4. Discussion

Les simulations numériques montrent que le spectre s'élargit en fonction du nombre de noyaux absorbeurs, quoique l'élargissement reste faible pour un petit nombre de noyaux. Pour avoir un élargissement important, il est nécessaire que le paramètre N soit assez grand (N supérieur à 20).

#### 4. Conclusion générale

Dans cet article nous avons étudié le problème où le rayonnement gamma émis par un noyau source interagit avec des noyaux Mössbauer, tous dans l'état fondamental, se trouvant à l'intérieur d'un réseau polycristallin dans lequel les noyaux sources sont incorporés.

L'évolution du rayonnement gamma a été étudiée en utilisant un modèle développé par Heitler, Harris et Hoy, permettant de transformer l'équation de Schrödinger, dépendant du temps, qui est une équation différentielle, en une série d'équations algébriques couplées. Le paquet d'onde du rayonnement gamma a été construit à partir duquel le spectre de fréquences a été défini.

Grâce à la simulation numérique des expressions analytiques des spectres d'émission, à l'aide du Logiciel Maple 11, nous avons trouvé que l'élargissement de ce spectre dû aux diffusions multiples augmente si le nombre de ces diffusions augmente. Pour un petit nombre de diffusions, la forme du spectre de fréquences ressemble toujours à une courbe de Lorentz. Pour avoir des déviations appréciable de cette courbe de Lorentz, le nombre de paramètre décrivant le nombre maximum de diffusions doit être supérieur à 20. Si l'élargissement du spectre est considérable, l'analyse des spectres Mössbauer devrait en tenir compte. L'expression fondamentale sur laquelle cette analyse devrait être basée est notre expression (30) dans le cas de la résonance exacte entre les noyaux sources et les noyaux absorbeurs. Si cette condition n'est pas réalisée, des généralisations, comme nos expressions (32), (33) et (34) pourraient être utilisées. Nous nous attendons à ce que les élargissements augmentent avec la différence entre les fréquences (énergies) des noyaux sources et celles des noyaux absorbeurs. Cependant, si cette différence est trop grande (plus large que la largeur naturelle  $\Gamma$  ), il n'y aura pratiquement plus d'absorption résonnante.

### **Références**

- Lynch F. J., Holland R. E. and Hamermesh M., 1960. Phys. Rev.120, 513.
- [2] Harris S. M., 1961. Phys. Rev. 124, 1178.
- [3] Hoy G. R., Phys J., 1997. Condens. Matter 9, 8749.
- [4] Heitler W., 1957. The Quantum Theory of Radiation, 3rd edition p164, Oxford University Press.
- [5] K. S. Krane, 1988. Introductory Nuclear Physics, John Wiley &Sons.
- [6] Hoy G. R. and Odeurs J., Can. J., 2012. Phys. 90, 855.
- [7] Cohen-Tannoudji C., Diu B., Laloë F., 2007. Mécanique quantique vol. 2, Ed. Hermann.
- [8] London R., 2000. The Quantum Theory of Light, 3rd edition, Oxford University Press.
- [9] Odeurs J. and Hoy G.R., 2006. Nuclear Instruments and Methods, Research in Physics, B 254, 143.
- [10] Gradshteyn I.S. and Ryznik I.M., 1980. Table of integrals, Series and Product, page 310, 3.351-3.
- [11] Greenwood N. N. and Gibb T. C., 1971. Mössbauer Spectroscopy, Chapman and Hall.