

# О гамма-спектрах ядер металла в кластере металлокарбона

Л.А.Ривлин

*Построены гамма-спектры резонансного поглощения и испускания ядерных переходов металлов в больших кластерах металлокарбона. Оценены возможности наблюдения гамма-линий естественной ширины в изолированной молекуле и подавления избыточного уширения линий в ансамбле молекул, а также возникновения скрытой инверсии населенностей ядерных состояний и квантового усиления типа когерентного стимулированного рассеяния.*

**Ключевые слова:** квантовая нуклеоника, нанофизика, фуллерены и металлокарбонаты, эффект Мессбауэра, изотоп гафний-181, скрытая инверсия ядерных населенностей, стимулированное когерентное рассеяние гамма-фотонов.

## 1. Введение

Кластеры углерода представляют собой большие молекулы, отличающиеся строго фиксированным числом атомов, замкнутой пространственной структурой и исключительно высокой стабильностью [1–4]. Гамма-спектр радиационных переходов (резонансного поглощения и испускания гамма-квантов) в ядрах атомов кластеров зависит как от характера взаимодействия ядер с колебательными состояниями этих молекул (подобно тому, как в кристаллах – с фононным полем), так и от их кинематики как целого. Анализ этих явлений заслуживает внимания, в частности, если вспомнить эффект Мессбауэра – замечательный пример возможности контролировать подобного рода взаимодействия в монокристаллах.

К сожалению, популярный и наиболее исследованный углеродный кластер – фуллерен  $C_{60}$ , который состоит из шестидесяти атомов углерода, расположенных в виде усеченного икосаэдра по поверхности сферы диаметром  $D$  (по разным данным, он составляет от 0.714 [5] до 0.74 нм [6]), едва ли пригоден для изучения его гамма-спектров, поскольку энергии возбуждения самых низших ядерных уровней изотопов углерода превышают 3 МэВ. В данном случае резонансное поглощение или испускание столь жесткого кванта, которое сопровождается отдачей ядра с энергией порядка долей килоэлектронвольта (эта энергия в десятки раз превышает величину, характеризующую стабильность кластера; например, энергия связи, приходящаяся на один атом фуллерена, равна 7.4–7.6 эВ [7, 8], а для отрыва молекулы  $C_2$  от всего фуллерена достаточно 4.6 ± 0.5 эВ [9]), способно произвести его полную дезинтеграцию.

Поэтому в качестве объекта исследования далее будет рассмотрен другой тип углеродного кластера – так называемый металлокарбон, состоящий из двенадцати

атомов углерода и восьми атомов металла ( $M_8C_{12}$ ), которые расположены в вершинах образованного двенадцатью правильными пятиугольниками додекаэдра. Разнообразие изотопов металлов (титана, ванадия, циркония, гафния [10–12]) открывает возможность выбора ядер с меньшими по сравнению с углеродом энергиями радиационных переходов. Параметры ядер некоторых изотопов металлов приведены в табл. 1 [13].

Устойчивость структуры металлокарбона достаточно велика и характеризуется величиной энергии связи, приходящейся на один атом. Так, в молекуле эта энергия равна 6.1 эВ [14, 15], т.е. немногим уступает этому же параметру для фуллерена, приведенному выше.

## 2. Влияние колебательных степеней свободы изолированного кластера металлокарбона на гамма-спектр

Изучение воздействия внутренних колебательных степеней свободы кластера металлокарбона на радиационные гамма-процессы в ядрах, входящих в состав его атомов, полезно начать с сопоставления этих процессов с аналогичными явлениями в кристаллах больших размеров.

В известной модуляционной модели [16] эффекта Мессбауэра (по существу свободной от квантовых представлений) гамма-линия испытывает модуляцию со стороны собственных колебаний кристаллической решетки, описываемых ее фононным спектром. Обращаясь к грубым оценкам порядков величин, можно заметить, что число колебательных мод решетки, близкое к числу атомов в кристалле, чрезвычайно велико. Интервал длин волн фононного спектра снизу задается размером кристалла, сверху – межатомным расстоянием (дебаевская частота), т.е. спектральный диапазон простирается на 7–8 порядков величин. Подобное богатство фононного спектра определяет характер модуляции гамма-линии, что выражается в ее сплошном неоднородном уширении без разрешения на отдельные составляющие, принадлежащие разным фононным модам.

Огромные количественные различия между кристаллом и кластером создают качественные различия в характере модуляции гамма-линии. В самом деле, число

Л.А.Ривлин. Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (технический университет), Лаборатория прикладной физики, Россия, 119454 Москва, просп. Вернадского 78; e-mail: lev\_rivlin@mail.ru

Табл.1.

| Изотоп                 | Время жизни            | Спин основного состояния $J_g$ | Энергия перехода $E$ (кэВ) | Время жизни возбужденного состояния $\tau$ (нс) | Спин возбужденного состояния $J_e$ | Мультипольность перехода |
|------------------------|------------------------|--------------------------------|----------------------------|---|------------------------------------|--------------------------|
| $^{47}_{22}\text{Ti}$  | стабилен               | $5^-/2$                        | 159.376                    | 0.21  | $7^-/2$                            | M1 + E2                  |
| $^{49}_{23}\text{V}$   | 330 суток              | $7^+/2$                        | 90.64                      | 0.228   | $5^+/2$                            | M1                       |
| $^{93}_{40}\text{Zr}$  | $1.53 \times 10^6$ лет | $5^+/2$                        | 266.88                     | 1.45  | $3^+/2$                            | M1 + E2                  |
| $^{172}_{72}\text{Hf}$ | 1.87 лет               | $0^+$                          | 95.22                      | 1.55  | $2^+$                              | E2                       |
| $^{174}_{72}\text{Hf}$ | $2 \times 10^{15}$ лет | $0^+$                          | 90.985                     | 1.66  | $2^+$                              | E2                       |
| $^{176}_{72}\text{Hf}$ | стабилен               | $0^+$                          | 88.35                      | 1.43  | $2^+$                              | E2                       |
| $^{177}_{72}\text{Hf}$ | стабилен               | $7^-/2$                        | 112.95                     | 0.583   | $9^-/2$                            | M1 + E2                  |
| $^{178}_{72}\text{Hf}$ | стабилен               | $0^+$                          | 93.18                      | 1.48  | $2^+$                              | E2                       |
| $^{179}_{72}\text{Hf}$ | стабилен               | $9^+/2$                        | 122.8                      | 0.037   | $11^+/2$                           | M1 + E2                  |
| $^{180}_{72}\text{Hf}$ | стабилен               | $0^+$                          | 93.326                     | 1.5   | $2^+$                              | E2                       |
| $^{181}_{72}\text{Hf}$ | 42.4 суток             | $1^+/2$                        | 45.88                      | –   | $3^-/2$                            | M1 + E2                  |
| $^{182}_{72}\text{Hf}$ | $9 \times 10^6$ лет    | $0^+$                          | 97.79                      | –   | $2^+$                              | E2                       |

колебательных мод кластера, близкое к числу составляющих его атомов, равно нескольким десяткам и на много порядков меньше числа мод кристалла. При сохранении положения верхней границы колебательного спектра кластера его нижняя граница повышается по сравнению со спектром кристалла на 6–7 порядков. В итоге (в отличие от сплошного уширения линии в кристалле) модуляционный спектр гамма-линии в кластере приобретает линейчатый характер, причем если межмодовый интервал колебательного спектра превышает естественную радиационную ширину гамма-перехода, линии модуляционного спектра оказываются хорошо разрешенными.

Если подобный подход применить для получения представлений о некоторых параметрах колебательного спектра металлокарбона, неизвестных из эксперимента, то согласно оценке частота низшей моды  $\Omega/2\pi = u_s/2D$ , где  $u_s$  – скорость звука в металлокарбоне. Тогда, например, если принять, что в металлокарбоне скорость звука близка к скорости звука в алмазе,  $u_s \approx 10^6$  см·с<sup>-1</sup>, а  $D \approx 0.5$  нм, то  $\Omega/2\pi \approx 10^{13}$  с<sup>-1</sup> и, соответственно, собственная энергия моды  $E_{\text{мс}} \approx 40$  мэВ; спектральный интервал до следующей моды также равен примерно 40 мэВ, а число мод не превышает 20. Такая оценка межмодового интервала означает, что ожидаемый линейчатый модуляционный гамма-спектр должен быть хорошо разрешен вплоть до времен жизни  $\tau$  возбужденного ядерного состояния, заметно превышающих  $10^{-13}$  с. Кроме того, оценки энергии низших мод металлокарбона позволяют допустить, что вероятности их теплового заселения в широком интервале температур (вплоть до комнатных) ничтожно малы.

Необходимо отметить сравнительную надежность приведенного способа оценки параметров колебательных спектров кластеров. Так, он дает неплохое согласие с имеющимися экспериментальными данными для молекулы фуллерена  $C_{60}$  [17]: оценка частоты низшей колебательной моды  $\Omega/2\pi = u_s/2D$  по диаметру молекулы  $D$  и скорости звука в алмазе  $u_s$  оказывается близкой к измеренному значению с точностью до 30 % при общем числе наблюдаемых колебательных мод около 30.

В скобках отметим, что характерный спектр колебательных возбуждений металлокарбона имеет простой аналог в теории упругости – вибрационные и деформационные моды упругой сферической оболочки.

Таким образом, следуя упомянутой модуляционной модели, можно ожидать, что влияние внутренних коле-

бательных степеней свободы металлокарбона на радиационные гамма-процессы в ядрах содержащихся в нем атомов должно выражаться в возникновении линейчатого гамма-спектра с небольшим числом хорошо разрешенных линий естественной радиационной ширины. Число этих линий определяется, с одной стороны, упомянутой выше малостью вероятности теплового возбуждения колебательных мод металлокарбона, а с другой – соотношением между энергией этих мод и уровнем их энергетических возмущений, сопровождающих гамма-процесс.

Эти возмущения возникают из законов сохранения импульса и энергии: при резонансном поглощении или испускании фотона с энергией  $\hbar\omega_\gamma$  свободным, не входящим в кристаллическую матрицу или кластер ядром, последнему передаются импульс фотона и отвечающая ему энергия отдачи

$$E_{\text{rec}} = \frac{(\hbar\omega_\gamma)^2}{2Mc^2} \approx \frac{(\hbar\omega_\gamma)^2}{2A}, \quad (1)$$

где  $M$  – масса ядра;  $A$  – его массовое число;  $c$  – скорость света (здесь и далее в численной формуле  $\hbar\omega_\gamma$  выражено в кэВ, а  $E_{\text{rec}}$  – в мэВ). Энергия отдачи (1), являющаяся максимально возможным возмущением, которое может быть передано в радиационном гамма-процессе содержащему ядро атому или его окружению, меняется для приведенных в табл.1 изотопов на два порядка: от  $E_{\text{rec}} \approx 4.1$  мэВ для  $^{181}_{72}\text{Hf}$  до  $E_{\text{rec}} \approx 390$  мэВ для  $^{93}_{40}\text{Zr}$ . Видно, что  $E_{\text{rec}}$  может быть как на порядок ниже, так и на порядок выше оценок энергии низшей колебательной моды металлокарбона.

В кластере подобное возмущение с энергией, не превышающей максимального значения  $E_{\text{rec}}$  (1), обычно рассеивается путем возбуждения колебательных состояний кластера и частично может быть передано ему в виде кинетической энергии движения как целого. Очевидная аналогия с условиями мессбауэровского эксперимента видна в исключении взаимодействия с собственными колебаниями кластера (в эффекте Мессбауэра – преодоление взаимодействия с фононной системой кристалла), что оказывается даже проще, чем в мессбауэровском случае, поскольку, во-первых, как отмечено выше, даже при комнатной температуре населенность кластерных состояний практически равна нулю, а во-вторых, даже максимально возможная энергия возмущения  $E_{\text{rec}}$  (1) оказывается сравнимой с энергией лишь нескольких низших собственных кластерных мод.

В итоге линейчатый гамма-спектр ядер металла в молекуле металлокарбона оказывается весьма ограниченным (по крайней мере для изотопов с не слишком высокой энергией отдачи  $E_{\text{rec}}$ , таких как  $^{181}_{72}\text{Hf}$  и  $^{179}_{72}\text{Hf}$ ) и может состоять из центральной линии и нескольких боковых сателлитов с естественными ширинами. Кроме того, в силу высокой структурной однородности молекулы металлокарбона можно сделать допущение о незначительности влияния неравномерности окружения ядра на уширение линии.

Если боковые линии гамма-спектра отсутствуют вовсе (как, например, в  $^{181}_{72}\text{Hf}$  с  $E_{\text{mc}} \ll E_{\text{rec}}$ ), то в изолированной молекуле металлокарбона существуют предпосылки для резонансного поглощения и испускания с естественными радиационными ширинами гамма-линий, спектрально совпадающих друг с другом. Необходимо подчеркнуть, что данное утверждение, как и все рассмотрение этого раздела, относится к явлениям, наблюдаемым в системе координат изолированного кластера без учета его движения как целого.

Попутно следует отметить, что облучение молекулы металлокарбона сторонним потоком резонансных гамма-квантов едва ли способно вызвать ее разрушение, поскольку максимально возможная энергия возмущения  $E_{\text{rec}}$  (1) существенно ниже указанной энергии связи кластера. Точно так же можно пренебречь воздействием фотоионизации металлокарбона гамма-квантами с сечением, как правило, существенно уступающим сечению резонансного поглощения ядрами.

### 3. Гамма-спектр одиночного кластера металлокарбона в лабораторной системе координат

В лабораторной системе координат в гамма-спектре одиночной свободной (т. е. не находящейся в контакте с другими молекулами или каким-либо субстратом) молекулы металлокарбона должен быть учтен обмен энергией с ее кинетическими степенями свободы, характеризующими движение молекулы как единого целого.

Если радиационный переход в ядре металла свободной молекулы металлокарбона происходит без возбуждения ее колебательных степеней свободы, то передаваемая всей молекуле в целом энергия отдачи

$$E_{\text{rec}}^{\text{mc}} \approx \frac{E^2}{2(N_{\text{C}}M_{\text{C}} + N_{\text{M}}M_{\text{M}})c^2} \approx \frac{E^2}{2(N_{\text{C}}A_{\text{C}} + N_{\text{M}}A_{\text{M}})}, \quad (2)$$

где  $N_{\text{C}} = 12$ ,  $N_{\text{M}} = 8$  и  $M_{\text{C}}$ ,  $M_{\text{M}}$  – числа атомов углерода и металла в молекуле и их массы соответственно; в численной формуле  $A_{\text{C}}$ ,  $A_{\text{M}}$  – их массовые числа, энергия ядерного состояния  $E$  измеряется в кэВ,  $E_{\text{rec}}^{\text{mc}}$  – в мэВ. Например, для металлокарбона с  $^{181}_{72}\text{Hf}$  из (2) получаем  $E_{\text{rec}}^{\text{mc}} = 0.66$  мэВ.

Энергия отдачи  $E_{\text{rec}}^{\text{mc}}$  черпается из энергии фотона в акте его поглощения или из энергии возбужденного состояния ядра в акте испускания фотона. Поэтому энергии  $\hbar\omega_{\gamma}^{\pm}$  поглощенного и испущенного гамма-квантов оказываются смещенными относительно энергии  $E$  ядерного состояния на величину энергии отдачи  $E_{\text{rec}}^{\text{mc}}$ ,

$$\hbar\omega_{\gamma}^{\pm} = E \pm E_{\text{rec}}^{\text{mc}}, \quad (3)$$

и разнесенными друг от друга на величину  $2E_{\text{rec}}^{\text{mc}}$  (индексы  $\pm$  относятся к резонансному поглощению и испусканию

соответственно). Если это расщепление (равное, например, 1.32 мэВ для металлокарбона с  $^{181}_{72}\text{Hf}$ ) превышает естественную радиационную ширину гамма-перехода, т. е. если

$$2E_{\text{rec}}^{\text{mc}} > 2\pi\hbar/\tau, \quad (4)$$

то спектральное совпадение линий резонансного гамма-поглощения и испускания устраняется. В частности, для металлокарбона с  $^{181}_{72}\text{Hf}$  эта ситуация возникает при  $\tau > 3 \times 10^{-12}$  с (точное значение  $\tau$  неизвестно).

Если свободная молекула движется со скоростью  $V$ , то все частоты поглощаемых и испускаемых фотонов оказываются доплеровски смещенными на постоянную фоновую величину, которая не играет роли при анализе явлений в одиночной молекуле, но подлежит учету в случае ансамбля молекул, обладающих различными скоростями.

Здесь же существенно, что из-за отдачи молекула металлокарбона приобретает добавку к скорости

$$\begin{aligned} \frac{\Delta V}{c} &= \frac{1}{c} \left( \frac{2E_{\text{rec}}^{\text{mc}}}{N_{\text{C}}M_{\text{C}} + N_{\text{M}}M_{\text{M}}} \right)^{1/2} = \frac{E/c^2}{N_{\text{C}}M_{\text{C}} + N_{\text{M}}M_{\text{M}}} \\ &\approx 10^{-6} \frac{E}{N_{\text{C}}A_{\text{C}} + N_{\text{M}}A_{\text{M}}}, \end{aligned} \quad (5)$$

параллельную или антипараллельную волновому вектору поглощенного или испущенного фотона соответственно ( $\Delta V/c \approx 2.88 \times 10^{-8}$  для металлокарбона с изотопом  $^{181}_{72}\text{Hf}$ ). Поэтому в лабораторной системе координат гамма-линии в дополнение к энергетическому смещению (3) оказываются еще доплеровски смещенными на величину

$$\hbar\Delta\omega_{\gamma}^{\text{D}} = \pm E \frac{\Delta V}{c} = \pm \frac{E^2/c^2}{N_{\text{C}}M_{\text{C}} + N_{\text{M}}M_{\text{M}}}, \quad (6)$$

знак которой зависит от направления наблюдения, и равную удвоенной энергии отдачи  $E_{\text{rec}}^{\text{mc}}$  из (2) ( $\hbar\Delta\omega_{\gamma}^{\text{D}} \approx \pm 1.32$  мэВ для  $^{181}_{72}\text{Hf}$ ). В результате спектры резонансного поглощения и испускания гамма-фотонов оказываются достаточно сложными.

Пусть для определенности приготовление молекулы состоит в возбуждении ее ядер сторонним, хорошо коллимированным пучком жестких квантов, задающим некоторое выделенное направление. Тогда с учетом вкладов как энергетического (3), так и доплеровского (6) смещений спектр резонансного поглощения по отношению к этому первичному возбуждающему пучку в случае, когда акты испускания отсутствуют, состоит из ряда дискретных линий с частотами

$$\begin{aligned} \omega_{\gamma}(k_a^*) &\approx \frac{E}{\hbar} \left( 1 + \frac{E_{\text{rec}}^{\text{mc}}}{E} + k_a^* \frac{\Delta V}{c} \right) \\ &\approx \frac{E}{\hbar} \left[ 1 + \left( k_a^* + \frac{1}{2} \right) \frac{E/c^2}{N_{\text{C}}M_{\text{C}} + N_{\text{M}}M_{\text{M}}} \right], \end{aligned} \quad (7)$$

где  $k_a^* \leq N_{\text{M}}$  – целое число последовательных предыдущих актов резонансного поглощения гамма-квантов ядрами разных атомов металла данной молекулы за время, существенно меньшее времени спонтанного распада возбужденного состояния ядра.

Оговорка об ограничении времени процесса приготовления молекулы весьма существенна, поскольку изотропность направления спонтанного испускания гамма-кванта, если бы оно происходило наряду с актами резонансного поглощения, и связанная с этим изотропность направлений добавки скорости  $\Delta V$  приводили бы к полной неопределенности величины проекции  $\Delta V$  на выделенное направление наблюдения; следовательно, распределение линий в спектре резонансного поглощения приобрело бы случайный характер. Это ограничение устанавливает минимальную величину спектральной плотности  $d\Psi/d\omega$  стороннего возбуждающего пучка гамма-фотонов:

$$\frac{d\Psi}{d\omega} > 2\pi k_a^* \left(\frac{E}{c\hbar}\right)^2 \frac{2J_g + 1}{2J_e + 1} \approx 1.6 \times 10^{16} E^2 \frac{2J_g + 1}{2J_e + 1} k_a^*, \quad (8)$$

где  $J_g$  и  $J_e$  – угловые моменты основного и возбужденного состояний соответственно;  $d\Psi/d\omega$  измеряется в  $\text{фот} \times \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . Здесь принято допущение, что коэффициент внутренней электронной конверсии  $\alpha \ll 1$ . Например,  $d\Psi/d\omega \geq 1.7 \times 10^{19} k_a^* \text{ фот} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  для  $^{181}_{72}\text{Hf}$ .

Случайность, вносимая спонтанностью распада, исключается, если испускание гамма-кванта индуцируется направленным пучком фотонов (при той же оговорке о кратковременности этого процесса по сравнению с временем спонтанного распада). Если индуцирующий пучок направлен параллельно пучку сторонних фотонов, осуществляющих возбуждение ядер, то общий спектр поглощения и испускания, учитывающий как  $k_a^*$  актов резонансного поглощения при предварительном приготовлении молекулы, так и  $k_a$  последующих актов поглощения ядрами уже приготовленной молекулы, а также  $k_e$  актов стимулированного испускания, принимает следующий вид:

$$\omega_\gamma(k_a^*, k_a, k_e) \approx \frac{E}{\hbar} \left( 1 \pm \frac{E_{\text{rec}}^{\text{mc}}}{E} \pm k_a^* \frac{\Delta V}{c} + k_a \frac{\Delta V}{c} - k_e \frac{\Delta V}{c} \right) \approx \frac{E}{\hbar} \left[ 1 + \left( \pm k_a^* + k_a - k_e \pm \frac{1}{2} \right) \frac{E/c^2}{N_C M_C + N_M M_M} \right]. \quad (9)$$

Здесь верхний и нижний знаки перед слагаемым  $1/2$  относятся соответственно к спектрам поглощения или испускания, а перед слагаемым  $k_a^*$  – к спектру, наблюдаемому параллельно или антипараллельно пучку фотонов, возбуждающих ядра в процессе приготовления молекулы.

Одновременно существуют линии поглощения или испускания только с единственными значениями  $k_a^*$ ,  $k_a$  и  $k_e$ , т.е. наблюдаемый спектр состоит всегда всего из одной линии и каждый акт поглощения или испускания происходит на новой частоте, а линейчатость спектра является в известном смысле виртуальной. Тем не менее можно указать частотное расстояние между этими фактически не существующими одновременно линиями виртуальных спектров (9), равное удвоенной энергии отдачи молекулы металлокарбона (2):

$$\Delta\omega_\gamma \approx 2E_{\text{rec}}^{\text{mc}}/\hbar. \quad (10)$$

Как правило, это расстояние превышает естественную радиационную ширину линии гамма-перехода на

порядки величин, т.е. линии виртуальных спектров хорошо разрешены.

Из (9) следует, что при любых значениях  $k_a^*$ ,  $k_a$  и  $k_e$  спектральные положения гамма-линий поглощения и испускания различаются на ту же удвоенную частоту отдачи молекулы (2).

Это указывает на предпосылки к возникновению скрытой ядерной инверсии [9] в отдельной молекуле, но отнюдь не на непосредственную возможность последовательных актов стимулированного испускания на одной и той же частоте, приводящих к осуществлению квантового усиления.

Причина последнего состоит в том, что после каждого акта испускания, сопровождающегося изменением числа  $k_e$  на  $+1$ , происходит приращение скорости молекулы на  $\Delta V$  (5) и перемещение на следующую дискретную линию спектра (9). Подобное перемещение по спектру исключается, и частота линии (9) стимулированного испускания остается неизменной (а следовательно, возникает возможность осуществления квантового усиления), если акты резонансного поглощения и испускания в разных ядрах кластера происходят одновременно и попарно так, что в (9) разность  $k_a - k_e = 0$ . Этот ход событий в силу равновероятности резонансного поглощения и стимулированного испускания (с точностью до множителя, связанного с величиной угловых моментов верхнего и нижнего уровней ядерного перехода) представляется осуществимым в бигармоническом (или просто широкополосном) стороннем фотонном пучке, как возбуждающем ядра, так и стимулирующем гамма-испускания на частотах, разнесенных друг от друга на  $\Delta\omega_\gamma$  (10). Оговорка относительности кратковременности этих процессов по сравнению с  $\tau$  остается в силе и выражается формулой вида (8) с  $k_a^* = 1$ . В сущности подобный процесс воспроизводит схему двухуровневой накачки [18], сопровождающейся стимулированным когерентным рассеянием жестких фотонов возбуждающего пучка [19].

В дополнение к (9) следует также напомнить, что весь гамма-спектр одиночной молекулы может быть доплеровски смещенным на фиксированную общую частоту, если молекула движется в лабораторной системе координат с постоянной переносной скоростью.

К особому случаю радиационных гамма-процессов в ядрах металлокарбона или других многоатомных кластеров (с выгодным отличием от обычных малоатомных молекул) следует отнести стимулированное испускание гамма-квантов ядрами одного и того же кластера, часть которых заранее приготовлена в возбужденном состоянии. В пределах одного кластера (т.е. в связанной с ним системе координат) гамма-линии естественной ширины полностью свободны как от доплеровского уширения, так и от доплеровского смещения при одновременном осуществлении условий скрытой инверсии. Это создает предпосылки (по крайней мере – гипотетические) для стимулированного гамма-испускания внутри отдельных изолированных многоатомных кластеров с достаточным числом предварительно возбужденных ядер.

#### 4. Гамма-спектр ансамбля свободных кластеров металлокарбона

Общий гамма-спектр ансамбля свободных молекул металлокарбона, образующих разреженную среду (газ, пучок молекул), есть суперпозиция линейчатых спектров

(б) каждой из молекул. Если доплеровское уширение, вызываемое их хаотическим (в том числе тепловым) движением, не превышает спектрального расстояния между линиями (7), т. е.

$$2\hbar\omega_\gamma \left[ 2 \ln 2 \left( \frac{k_B T_{\text{eff}}/c^2}{N_C M_C + N_M M_M} \right) \right]^{1/2} < 2E_{\text{rec}}^{\text{mc}} \quad (11)$$

( $T_{\text{eff}}$  – эффективная температура ансамбля и  $k_B$  – постоянная Больцмана), то общий спектр остается линейчатым. Неравенство (11) налагает ограничение на температуру ансамбля молекул

$$T_s < \frac{1}{8k_B \ln 2} \frac{E^2/c^2}{N_C M_C + N_M M_M} \approx 2.2 \frac{E^2}{N_C A_C + N_M A_M}. \quad (12)$$

Второе, более жесткое ограничение на температуру возникнет, если потребовать сохранения естественной радиационной ширины отдельной линии суммарного линейчатого спектра ансамбля молекул:

$$T_\tau < \frac{\pi^2 \hbar^2 c^2}{2k_B (E\tau)^2 \ln 2} (N_C M_C + N_M M_M) \\ \approx 3.4 \times 10^{-5} \frac{N_C A_C + N_M A_M}{(E\tau)^2}, \quad (13)$$

(где  $\tau$  – в нс). Для металлокарбона с  $^{181}_{72}\text{Hf}$ , если принять для неизвестной величины времени жизни  $\tau = 1$  нс, получим  $T_s < 3$  К и  $T_\tau < 2.6 \times 10^{-5}$  К.

Обращает на себя внимание противоположный характер зависимостей от параметра  $E^2/NM$  в обоих ограничениях на температуру (12), (13).

Следует подчеркнуть, что условие (11) устранения избыточного уширения гамма-линии открывает возможность наблюдения квантового усиления в форме стимулированного когерентного рассеяния [19] с максимально реализуемым значением сечения индуцированного испускания во всем ансамбле молекул.

Выполнение неравенств (12), (13) в эксперименте с газом молекул металлокарбона может оказаться достаточно проблематичным. По-видимому, более реальной может оказаться попытка монокинетизации молекулярных пучков металлокарбона по выделенному направлению, совпадающему с волновыми векторами гамма-фотонов.

Молекулы металлокарбона способны образовывать устойчивые отрицательные и положительные ионы [6]. Это их свойство может быть использовано для формирования металлокарбонных пучков и их дальнейшей монокинетизации методами лазерного фотоотрыва электрона [20] или лазерной фотоионизации [21] во внешнем ускоряющем электрическом поле. Например, первый метод [20], при котором образуется монокинетизированный пучок нейтральных молекул, состоит в ускорении однозарядных отрицательных молекулярных ионов, обладающих дисперсией исходных скоростей, в постоянном электрическом поле навстречу излучению оптического лазера. Ускорение продолжается до момента, когда доплеровски смещенная частота фотоотрыва электрона

каждого из молекулярных ионов совпадает с частотой лазера и ион превращается в нейтральную молекулу. Для разных молекул это происходит в разные моменты времени, но при равных скоростях, ответственных за необходимое доплеровское смещение. В результате возникает монокинетизированный пучок нейтральных молекул с дисперсией продольных скоростей, в основном задаваемой крутизной зависимости сечения фотоотрыва электрона иона металлокарбона от частоты света, сведения о которой сегодня, к сожалению, довольно скудны.

## 5. Заключение

Итогом исследования гамма-спектров ядер атомов металла в углеродных кластерах (металлокарбонах) является установление возможности возникновения в изолированной молекуле гамма-линий резонансного поглощения и испускания с естественной радиационной шириной, которые в известном смысле можно рассматривать как аналоги бесфонной мессбауэровской линии. Это открывает возможность гамма-спектроскопических исследований свойств кластеров подобно тому, как методами классической мессбауэровской спектроскопии исследуются свойства твердого тела.

Кроме того, спектральное расщепление линий резонансного поглощения и испускания создает условия для возникновения в изолированных молекулах так называемой скрытой ядерной инверсии населенностей, а также квантового усиления типа когерентного индуцированного рассеяния. Осуществление аналогичных эффектов в пучке кластеров требует его монокинетизации с целью подавления доплеровского уширения линий, вызываемого дисперсией скоростей молекул пучка, в частности методами лазерного фотоотрыва электрона или фотоионизации во внешнем электрическом поле.

Работа выполнена при частичной поддержке Минобрнауки РФ (проект РНП.2.1.1.1094).

1. Kroto H.W., Heath J.R., O'Brien S.C., Curl R.F., Smalley R.E. *Nature*, **318**, 162 (1985).
2. Смоли Р.Е. *УФН*, **168**, 323 (1968).
3. Керл Р.Ф. *УФН*, **168**, 331 (1968).
4. Крото Г. *УФН*, **168**, 343 (1968).
5. Kreatschmer W., Fostiropoulos K., Huffman D.R. *Chem. Phys. Lett.*, **170**, 167 (1990).
6. Елецкий Ф.В., Смирнов Б.М. *УФН*, **165**, 977 (1995).
7. Weaver J.H. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 1741 (1991).
8. Saito S., Oshyama A. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 2637 (1991).
9. Radi P.P. et al. *Chem. Phys. Lett.*, **174**, 223 (1990).
10. Guo B.K., Kerns K.P., Castleman A.W. Jr. *Science*, **255**, 1411 (1992).
11. Guo B.K., Kerns K.P., Castleman A.W. Jr. *Science*, **256**, 515 (1992).
12. Guo B.K. et al. *J. Chem. Phys.*, **97**, 5243 (1992).
13. Firestone R.B. *Table of Isotopes CD ROM* (Lawrence Berkeley Nat. Lab., Wiley-Interscience, 1998).
14. Reddy V.V., Khanna S.N., Jena P. *Science*, **258**, 1640 (1992).
15. Rantala T. T. et al. *Zs. Phys. D*, **26**, 255 (1993).
16. Шапиро Ф.Л. *УФН*, **72**, 685 (1960).
17. Prassides K. et al. *Chem. Phys. Lett.*, **187**, 455 (1991).
18. Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **26**, 122 (1999).
19. Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **27**, 189 (1999).
20. Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **17**, 635 (1990).
21. Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **18**, 651 (1991).