

2023-02

# Modification des Spectres Mössbauer des noyaux de $^{57}\text{Fe}$ incorporés dans un absorbeur soumis à des champs électromagnétiques statiques produisant des champs magnétiques et/ou un gradient de champ électrique, la source étant $^{57}\text{Co}(^{57}\text{Fe})\text{Rh}$

NSHEMEZIMANA, Jean Bosco

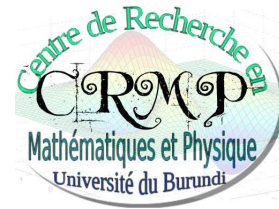
UB

---

<https://repository.ub.edu.bi/handle/123456789/463>

*Téléchargé depuis le dépôt institutionnel officiel de l'Université du Burundi*

UNIVERSITE DU BURUNDI  
FACULTE DES SCIENCES  
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE  
CENTRE DE RECHERCHE EN MATHEMATIQUES ET PHYSIQUE



---

**Modification des Spectres Mössbauer des noyaux de  $^{57}\text{Fe}$  incorporés dans un absorbeur soumis à des champs électromagnétiques statiques produisant des champs magnétiques et/ou un gradient de champ électrique, la source étant  $^{57}\text{Co}(^{57}\text{Fe})\text{Rh}$**

---

Par:

**NSHEMEZIMANA Jean Bosco**

Mémoire présenté et défendu publiquement en vue de l'obtention du  
Diplôme de Master en Physique fondamentale et appliquée.

Option: Physique fondamentale

---

**Sous la direction de:**

Directeur: Professeur Émérite Jos ODEURS

Co-Directeur: Dr Thaddée BARANCIRA

Bujumbura, février 2023

# Composition du Jury

Docteur KARANGWA Pierre-Célestin: *Président du Jury*

Docteur HAVYARIMANA Claver: *Secrétaire du Jury*

Professeur Emérite Jos ODEURS: *Directeur de Mémoire*

Docteur BARANCIRA Thaddée: *Co-Directeur de mémoire*

# Dédicace

A ma famille;  
A tous ceux qui me sont chers;

Je dédie ce mémoire.

# Remerciements

Un travail scientifique n'est jamais le fruit d'une seule personne mais plutôt le résultat d'une conjugaison des efforts de plusieurs individus dont les qualités et les compétences méritent d'être louées.

Je remercie vivement et du fond du cœur le Professeur Jos Odeurs, promoteur et Directeur de ce mémoire pour son dévouement, ses conseils pratiques, son expérience et surtout son humilité malgré ses nombreuses responsabilités.

Ma profonde gratitude s'adresse au Docteur Thaddée BARANCIRA, Co-Directeur de ce mémoire qui, en dépit de ses multiples obligations, a accepté de co-superviser ce mémoire et d'en assurer le suivi de sa rédaction. Ses précieux conseils, ses encouragements et son attitude scientifique m'ont été d'une grande utilité. Qu'il trouve ici les sentiments de ma reconnaissance.

L'évaluation d'un tel travail n'est possible que grâce aux efforts des membres du jury. C'est ainsi que je les remercie pour le temps qu'ils ont consacré à la lecture critique de ce travail. Leurs remarques combien importantes me seront utiles pour son amélioration.

Je dis merci aux professeurs de la Faculté des Sciences et particulièrement ceux du Département de Physique et plus spécialement ceux de Master de Physique pour la formation tant morale que scientifique dont ils m'ont fait profiter durant cette période cruciale de formation.

Remerciements également à l'Ecole Normale Supérieure, Institution d'Origine, pour m'avoir permis de faire partie de cette formation.

Aux étudiants de Master avec qui j'ai partagé la vie estudiantine durant cette période de formation, je leur dis merci.

Qu'il me soit permis d'exprimer mes sentiments de gratitude à mes parents pour les efforts fournis durant mes études, à ma famille pour avoir supporté mon indisponibilité durant cette période de formation.

Enfin, que tous ceux non cités ici qui, de près ou de loin ont contribué à ma formation ou à la réalisation du présent travail, trouvent dans son aboutissement, le couronnement de leurs efforts.

## Résumé

La spectroscopie Mössbauer est une technique expérimentale basée sur l'émission et l'absorption résonnantes du rayonnement gamma sans recul des noyaux (émetteurs et absorbeurs) et qui fournit des spectres expérimentaux. Les effets issus des trois interactions hyperfines telles que le déplacement isomérique, les interactions quadripolaire électrique et dipolaire magnétique ainsi que leurs combinaisons sur le spectre Mössbauer de la transition  $\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$  du  $^{57}\text{Fe}$  pèsent sur la forme des spectres résultants. Ces spectres dits spectres Mössbauer sont des résonances, chacune d'elles ayant la forme d'une courbe lorentzienne, qui est caractérisée par la position qui dépend de ces interactions, d'une largeur à mi-hauteur et d'une intensité relative. Les transitions permises obéissent aux règles de sélection. Avec les données comme  $B = 33 \text{ T}$ ;  $\delta = 0,226 \text{ mm/s}$ ;  $Q = 0,17 \text{ b}$ ;  $V_{zz} = 1,614 \text{ V/m}^2$  appliquées à la transition Mössbauer, et via le logiciel Maple 13, les graphiques des courbes des spectres Mössbauer ont été tracés. Les allures de ces spectres sont des courbes lorentziennes tournées vers le bas, ce qui prouve que ce sont des spectres d'absorption.

Ces spectres montrent que le déplacement isomérique traduit le décalage de la position des spectres. Le moment quadripolaire en interaction avec le gradient du champ électrique produit un couplage quadripolaire dont l'énergie d'interaction contribue à la levée partielle de dégénérescence des niveaux visualisée par deux pics dans le spectre Mössbauer obtenu. L'interaction dipolaire magnétique est visualisée dans le spectre par l'apparition de 6 pics de résonances. L'introduction de l'interaction quadripolaire électrique, en combinaison avec l'interaction dipolaire magnétique, a tendance à rompre la symétrie rendant le spectre asymétrique. La méthode des perturbations indépendantes du temps a été employée pour estimer l'interaction faible par rapport à l'autre. Cela a concerné l'interaction quadripolaire car elle est souvent faible pour le  $^{57}\text{Fe}$ . L'établissement de ces spectres Mössbauer a été limité au gradient de champ axial pour des raisons pratiques.

**Mots clés:** émission et absorption résonnantes, transition Mössbauer, isotope Mössbauer, spectroscopie Mössbauer, effet Doppler, interactions hyperfines du noyau, courbe lorentzienne.

# Abstract

Mössbauer spectroscopy is an experimental technique based on the resonant emission and absorption of gamma radiation without recoil from emitter and absorber nuclei and gives experimental spectra. The effects of the three hyperfine interactions such as the isomeric shift, the electric quadrupole and the magnetic dipole interactions as well as their combinations on the Mössbauer spectrum of the transition  $\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$  of  $^{57}\text{Fe}$  influence the shape of the resulting spectra.

These Mössbauer spectra are resonances, each of them having the shape of a lorentzian curve, which is characterized by the position that depends on these interactions, a width at mid-height and relative intensity. Allowed transitions obey selection rules. With the data as  $B = 33 \text{ T}$ ;  $\delta = 0,226 \text{ mm/s}$ ;  $Q = 0,17 \text{ b}$ ;  $V_{zz} = 1,614 \text{ V/m}^2$  applied at the Mossbauer transition, and via the Maple 13 software, the graphs of the curves of the Mössbauer spectra have been simulated. The shapes of these spectra are lorentzian curves facing down, which proves that they are absorption spectra.

These spectra show that the isomeric shift reflects shift in the position of the spectra. The quadrupole moment in interaction with the gradient of the electric field produces a quadrupole coupling whose interaction energy contributes to the partial lifting of the degeneracy of the levels visualized by two peaks in the Mössbauer spectrum obtained. The magnetic dipole interaction is visualized in the spectrum by the appearance of the 6 resonant peaks. The introduction of the electric quadrupole interaction in combination with the magnetic dipole interaction, tends to break the symmetry making the spectrum asymmetrical. The perturbation method was employed to estimate the weak interaction with respect to each other. This concerned the quadrupole interaction because it is often weak for  $^{57}\text{Fe}$ . The establishment of these Mössbauer spectra has been limited to the axial field gradient for practical reasons.

**Key words:** resonant emission and absorption, Mössbauer transition, Mössbauer isotope, Mössbauer spectroscopy, Dopler effect, hyperfine interactions, Lorentzian curves.

# Table des matières

Composition du Jury	i
Dédicace	ii
Remerciements	iii
Résumé	iv
Abstract	v
Table des Matières	vi
Liste des Tableaux	ix
Liste des Figures	xii
Sigles et abréviations	xiii
Avant-propos	xiv
Introduction générale	1
<b>1 LES TRANSITIONS NUCLEAIRES</b>	<b>3</b>
1.1 Les caractéristiques du noyau: notions de nucléides, isobares, isotones et isotopes . . . . .	3
1.2 Les transitions nucléaires . . . . .	4
1.2.1 Emission et absorption: résonance nucléaire . . . . .	4
1.2.2 Facteurs de la résonance nucléaire . . . . .	4
1.3 Effet Mössbauer . . . . .	13

1.3.1	Historique . . . . .	13
1.3.2	Définition de l'effet Mössbauer . . . . .	13
1.3.3	Fraction sans recul . . . . .	14
1.3.4	Observation et mesure de l'effet Mössbauer . . . . .	15
1.4	Déplacement isomérique . . . . .	16
<b>2</b>	<b>INTERACTIONS HYPERFINES DU NOYAU</b>	<b>18</b>
2.1	Introduction . . . . .	18
2.2	Interactions électriques du noyau avec son environnement . . . . .	18
2.2.1	Moment quadripolaire électrique et gradient de champ électrique . . . . .	18
2.2.2	Hamiltonien quadripolaire électrique . . . . .	21
2.2.3	Valeurs et vecteurs propres de l'opérateur quadripolaire électrique $H_Q$ . . . . .	23
2.2.4	Application pour le $^{57}\text{Fe}$ . . . . .	25
2.3	Interaction dipolaire magnétique . . . . .	27
2.3.1	Moment magnétique du noyau . . . . .	27
2.3.2	Hamiltonien dipolaire magnétique: valeurs et vecteurs propres . . . . .	28
2.3.3	Effet Zeeman . . . . .	29
2.3.4	Transition nucléaire . . . . .	30
2.4	Interactions quadripolaire électrique combinée à l'interaction dipolaire mag- nétique . . . . .	32
2.4.1	Hamiltonien d'interaction: cas où $\vec{B} // OZ'$ , symétrie axiale ( $\eta = 0$ ) et $V_{zz} // OZ$ . . . . .	32
2.4.2	Champ magnétique $\vec{B}$ parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ : $\vec{B} // V_{zz} // OZ' // OZ$	33
2.4.3	Champ magnétique $\vec{B}$ non parallèle au gradient de champ: ( $OZ' \nparallel$ $OZ$ ) . . . . .	34
<b>3</b>	<b>SPECTRE MOSSBAUER POUR UNE SOURCE NON MAGNETIQUE: LE <math>^{57}\text{Fe}</math> INCORPORE DANS LE RHODIUM (<math>^{57}\text{CoRh}</math>)</b>	<b>38</b>
3.1	Introduction: spectre Mössbauer . . . . .	38
3.2	Absence d'interactions dans la source et dans l'absorbeur . . . . .	40
3.3	Présence d'un champ magnétique seul dans l'absorbeur . . . . .	41
3.4	Présence d'une interaction quadripolaire dans l'ab- sorbeur . . . . .	43

3.4.1	Gradient de champ axial ( $\eta = 0$ ) . . . . .	43
3.4.2	Gradient de champ non axial ( $\eta \neq 0$ ) . . . . .	45
3.5	Présence des interactions simultanées: interaction quadripolaire électrique combinée à une interaction dipolaire magnétique . . . . .	50
3.5.1	Symétrie axiale ( $\eta = 0$ ), $\vec{B} // OZ'$ et $V_{zz} // OZ$ . . . . .	50
3.5.2	Champ magnétique parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ : $\vec{B} // V_{zz} // OZ' // OZ$ avec $\eta = 0$ . . . . .	51
3.5.3	Champ magnétique $\vec{B}$ non parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ ( $OZ' \nparallel OZ$ ( $\vec{B} \nparallel V_{zz}$ ))) . . . . .	53
<b>4</b>	<b>SIMULATION ET INTERPRETATION DES RESULTATS</b>	<b>57</b>
4.1	Absence d'interactions dans la source et dans l'absorbeur. . . . .	57
4.2	Présence d'un champ magnétique seul dans l'absorbeur. . . . .	58
4.3	Présence d'une interaction quadripolaire dans l'absorbeur . . . . .	59
4.3.1	Gradient de champ axial ( $\eta = 0$ ) . . . . .	59
4.3.2	Gradient de champ non axial ( $\eta \neq 0$ ) . . . . .	60
4.4	Présence des interactions simultanées: interaction quadripolaire électrique combinée à une interaction dipolaire magnétique . . . . .	61
4.4.1	Symétrie axiale ( $\eta = 0$ ), $\vec{B} // OZ'$ et $V_{zz} // OZ$ . . . . .	61
4.4.2	Champ magnétique $\vec{B}$ n'est pas parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ ( $OZ' \nparallel OZ$ ( $\vec{B} \nparallel V_{zz}$ ), $OZ' \nparallel OZ$ ). . . . .	61
4.5	Discussion et interprétation des résultats . . . . .	63
4.5.1	Effet du déplacement isomérique . . . . .	64
4.5.2	Effet quadripolaire électrique . . . . .	64
4.5.3	Effet dipolaire magnétique . . . . .	64
4.5.4	Effet lié à la combinaison des interactions dipolaire magnétique et quadripolaire électrique . . . . .	65
	<b>CONCLUSION GENERALE</b>	<b>70</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>72</b>

# Liste des tableaux

2.1	Intensités relatives ( $4^{\text{ème}}$ colonne), intensités totales en fonction de l'angle d'émission $\theta$ . . . . .	32
-----	---	----

# Liste des figures

1.1	Processus d'émission et d'absorption: (a) émission, (b) absorption . . . . .	4
1.2	Largeur naturelle $\Gamma$ . . . . .	5
1.3	Emission avec recul . . . . .	6
1.4	Effet de l'émission avec recul . . . . .	7
1.5	Absorption avec recul . . . . .	8
1.6	Effet d'absorption avec recul . . . . .	9
1.7	Effet d'émission et d'absorption avec recul . . . . .	9
1.8	Désintégration du $^{57}\text{Fe}$ . . . . .	10
1.9	Elargissement des raies d'émission et d'absorption par effet Doppler et élargissement thermique. . . . .	12
1.10	Recouvrement partiel des spectres dû à l'élargissement thermique par effet Doppler. . . . .	13
1.11	Schéma d'observation de l'effet Mössbauer . . . . .	15
1.12	Spectre Mössbauer résultant d'un déplacement isométrique . . . . .	16
2.1	Eclatement (dédoublment) des niveaux d'énergie d'un noyau de $^{57}\text{Fe}$ de spin $I = \frac{3}{2}$ , dû à une interaction quadripolaire électrique ; symétrie axiale du gradient de champ électrique ; $qQ > 0$ . . . . .	25
2.2	Transitions 1 et 2 relatives à la transition 14,4 keV de $^{57}\text{Fe}$ soumis à une interaction quadripolaire électrique ; le cas de symétrie axiale du gradient de champ électrique, $\eta = 0$ ; $qQ > 0$ . . . . .	27
2.3	Effet Zeeman nucléaire pour les deux premiers états de $^{57}\text{Fe}$ . . . . .	30
2.4	Les six transitions permises pour le $^{57}\text{Fe}$ dans le cas de l'Effet Zeeman nucléaire, numérotées de 1 à 6 par ordre croissant de l'énergie du photon $\gamma$ . . . . .	31
2.5	Interaction combinée dipolaire magnétique et quadripolaire électrique pour le niveau de 14,4 keV de $^{57}\text{Fe}$ . . . . .	33

2.6	Transitions Mössbauer de $^{57}\text{Fe}$ numérotées par ordre croissant de l'énergie.	34
2.7	Les deux systèmes de coordonnées $OXYZ$ et $OX'Y'Z'$ .	35
3.1	Energie d'une source et un absorbeur non magnétiques ( $^{57}\text{Fe}$ ).	40
3.2	Energie d'une source non magnétique et un absorbeur magnétique ( $^{57}\text{Fe}$ ), $\delta$ est le déplacement isomérique de la source par rapport à l'absorbeur.	41
3.3	Niveau d'énergie du $^{57}\text{Fe}$ : absorbeur (avec interaction quadripolaire) et la source sans interaction électrique, symétrie axiale.	44
3.4	Niveau d'énergie du $^{57}\text{Fe}$ : absorbeur (avec interaction quadripolaire électrique) et la source sans aucune interaction, symétrie non axiale.	49
3.5	Transitions Mössbauer de $^{57}\text{Fe}$ dont l'absorbeur est soumis aux interactions combinées.	52
3.6	Transitions Mössbauer de $^{57}\text{Fe}$ numérotées par ordre croissant de l'énergie.	55
4.1	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source et l'absorbeur ne subissant pas d'interaction; $\delta = 0, 226 \text{ mm/s}$ .	58
4.2	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique.	59
4.3	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction quadripolaire électrique.	60
4.4	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction quadripolaire électrique.	61
4.5	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique et quadripolaire électrique.	62
4.6	Spectre Mössbauer de la transition du $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique et quadripolaire électrique.	63
4.7	Spectre Mössbauer de $\text{FeF}_3$ à 4,2 K et au voisinage de la température de Néel. [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 6.18, page 149]	66
4.8	Spectres Mössbauer de $(\text{Me}_4\text{N})_2\text{FeCl}_4$ [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 6.10, page 126].	67
4.9	Spectre Mössbauer à 7 K pour "le bleu de Prusse" [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 7.8, page 180].	67

---

4.10 Spectre Mössbauer: source noyaux Fe soumis à une interaction quadripolaire électrique, les noyaux de l'absorbeur ne sont pas soumis à une interaction quadripolaire. Référence [Battle et al., 2007] . . . . .	68
4.11 Spectre Mössbauer du fer métallique soumis à l'interaction dipolaire magnétique. [Référence [Vértes et al., 1979]]. . . . .	68
4.12 Spectre Mössbauer à T=4,2 K (température d'hélium liquide), absorbeur $\text{FeRhMN}$ (substance ferromagnétique), source $^{57}\text{Co}(^{57}\text{Fe})\text{Rh}$ . Référence [Battle et al., 2007]. . . . .	69
4.13 Spectre Mössbauer de $\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$ en raison de l'interaction magnétique et quadripolaire combinée, le spectre est asymétrique. [Référence [Vértes et al., 1979], figure I.27, page 84]. . . . .	69

## Sigles et abréviations

- u.m.a: unité de masse atomique
- $|e\rangle$ : état excité
- $|f\rangle$ : état fondamental
- $E_e$ : énergie de l'état excité
- $E_f$ : énergie de l'état fondamental
- $CE$ : conversion électronique
- $T_{\frac{1}{2}}$ : temps de demi-vie
- PAS: Principal Axis System

# Avant-propos

Ce mémoire rentre dans le cadre de l'obtention du diplôme de Master en Physique fondamentale et appliquée, option de Physique fondamentale. Il est du ressort des interactions hyperfines du noyau et de son environnement. Il étudiera la modification des spectres Mössbauer des isotopes Mössbauer, en particulier des noyaux de  $^{57}\text{Fe}$  incorporés dans un absorbeur soumis à des champs électromagnétiques produisant des champs magnétiques et Gradient de champs électriques, avec comme source le  $^{57}\text{Co}(^{57}\text{Fe})\text{Rh}$ .

L'idée de ce mémoire de recherche est venue du constat que la spectroscopie Mössbauer est une méthode expérimentale qui donne des spectres expérimentaux. Les étudiants éprouvent des difficultés à pouvoir réaliser de telles expériences car la plupart des institutions universitaires ne possèdent pas ce cet appareil parfois coûteux.

Cette étude se veut être une contribution devant permettre de mettre en relief les différents obstacles liés (surtout au rareté de ce précieux outil), mais aussi les opportunités pour pouvoir prédire théoriquement en connaissant les différents paramètres Mössbauer caractéristiques des isotopes Mössbauer concernés, et sur base des logiciels spécifiques tel que Maple 13, la forme de ces spectres avant de procéder à l'expérimentation. Basée sur l'établissement des expressions analytiques qui décrivent les phénomènes physiques responsables de cette technique spectroscopiques, elle permet également au monde scientifique de s'imprégner des concepts liés aux interactions hyperfines des noyaux en rapport avec la spectroscopie Mössbauer.

L'établissement de ces spectres Mössbauer a été limité au gradient de champ axial avec des valeurs des paramètres Mössbauer spécifiques. Pour des raisons pratiques de simplicité la variation de ces paramètres caractéristiques du  $^{57}\text{Fe}$  tels que le champ magnétique interne et externe, le moment quadripolaire électrique, l'interaction quadripolaire électrique, le paramètre d'asymétrie n'a pas été faite.

Pour des gradients non axiaux, l'analyse de tel cas demanderait plusieurs années avec des calculs relativement plus complexes et parfois avec un logiciel spécifique incluant des aspects de programmation poussés.

# Introduction générale

La matière est formée par des molécules, les molécules sont faites par des atomes (ions et isotopes), les atomes sont constitués par des noyaux et des nuages d'électrons qui les entourent. L'emplacement du noyau vis-à-vis de son environnement ne le laisse pas indifférent. Les interactions électriques et magnétiques provoquent des instabilités (perturbations) à l'endroit des noyaux dont les conséquences sur leurs structures hyperfines aboutissent à des perturbations sur leurs niveaux énergétiques et sur leurs spectres associés.

Les effets de ces instabilités se répercutent sur l'émission et l'absorption des photons (ici des photons gamma) par les noyaux de ces atomes. Les interactions nucléaires qu'on peut observer sont de trois types: le déplacement isomérique (ou chimique), l'interaction monopolaire électrique, le couplage quadripolaire et l'effet Zeeman nucléaire dû à l'interaction dipolaire magnétique [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Abragam, 1964], [Cotton, 1960].

L'étude de ces interactions, par la technique de spectroscopie Mössbauer basée sur l'émission et l'absorption résonnantes par des noyaux atomiques dans un solide (pour négliger l'effet de recul), fournit des spectres dits Mössbauer dont l'analyse offre des informations sur l'environnement de l'atome.

Depuis sa découverte, en 1957, elle permet d'étudier avec une grande précision la structure hyperfine des niveaux énergétiques du noyau atomique, leurs perturbations sous l'effet de l'environnement chimique, électrique et magnétique de l'atome, de son étage d'oxydation, de différents ligands, et bien d'autres applications dans divers domaines. Elle peut s'appliquer à toutes sortes de matériaux solides (incluant les systèmes cristallins, amorphes, quasicristallins, nanocristallins, voire solutions gelées, alliages métalliques, isolants, conducteurs, polymères voire céramiques) et les nanostructures (poudres nanostructurées, nanoparticules). Elle peut donc répondre à de nombreuses questions d'ordre académiques mais également appliquées, rencontrées dans de nombreux domaines de la Physique, Géologie, Chimie et Biologie, selon la nature des isotopes présents [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Abragam, 1964], [Cotton, 1960].

Limité aux échantillons solides contenant des isotopes Mössbauer, les sources d'excitation doivent être adaptées à l'isotope du composé étudié (ex :  $^{57}\text{Co}$  pour  $^{57}\text{Fe}$ ). Seulement une quarantaine d'isotopes sont accessibles dont les plus couramment étudiés et

les plus intéressants sont le  $^{57}\text{Fe}$ ,  $^{119}\text{Sn}$ ,  $^{119}\text{Sb}$ ,  $^{170}\text{Dy}$ ,  $^{197}\text{Au}$ , dont le  $^{57}\text{Fe}$  reste le plus utilisé en raison de sa transition nucléaire des 2 premiers états nucléaires de 14,4 keV [Greenwood and Gibb, 1971], [Janot, 1972], [L.Cohen, 1976].

Bien plus, la spectroscopie étant une méthode expérimentale, les spectres Mössbauer qui en résultent sont également expérimentaux. Cet aspect, quoi qu'avantageux, possède certaines lacunes liées notamment à la rareté de ce précieux appareil (le spectromètre Mössbauer), du coût de son kit parfois élevé face aux capacités de certaines universités à s'en approprier ou à assurer son entretien (cas de l'Université du Burundi où ce matériel, jadis opérationnel, est obsolète).

De l'autre côté, des recherches en ce domaine ne cessent de s'élargir. Dans ce travail nous proposons un modèle analytique d'estimation de ces spectres à partir des paramètres spectroscopiques de l'isotope à étudier. Cette étude offre un triple avantages au monde scientifique: fournir et prédire la forme de spectres Mössbauer précurseurs à partir des paramètres Mössbauer caractéristiques de l'élément avant de procéder à l'expérimentation, contribuer à l'étude des spectres Mössbauer avec peu de moyens et enfin aider les étudiants en formation universitaire dans la maîtrise des travaux pratiques du cours d'interactions hyperfines.

Pour bien fixer les idées, ce modèle sera appliqué de façon détaillée à l'isotope du  $^{57}\text{Fe}$  où les effets des trois paramètres hyperfins (le déplacement isomérique, interactions dipolaire magnétique et quadripolaire électrique) pèsent sur le profil du spectre du  $^{57}\text{Fe}$ .

La méthode est basée sur l'établissement des expressions analytiques qui décrivent les phénomènes physiques responsables de cette technique spectroscopique. Les résultats obtenus sont simulés, à l'aide du logiciel Maple 13, pour prédire l'allure des spectres correspondants. Ce logiciel est choisi en raison de sa simplicité dans la manipulation. Afin d'examiner l'exactitude des expressions établies, les profils de ces spectres seront confrontés aux spectres standard de l'isotope en question.

Pour bien comprendre la suite, la description de la spectroscopie Mössbauer et ses effets relatifs sont exploités au premier chapitre. Dans le second chapitre, nous appliquons la théorie de la spectroscopie Mössbauer aux différentes interactions hyperfines entre autres, le déplacement isomérique, l'éclatement quadripolaire électrique, l'effet Zeeman et l'interaction combinée, pour établir les conditions de résonance donnant accès aux spectres Mössbauer. Au troisième chapitre, les expressions de résonances obtenues pour chaque type d'interactions sont explicitées. Avec un choix judicieux des différents paramètres qui les caractérisent, ces conditions de résonances sont exploitées numériquement par le logiciel (Maple 13), pour générer les profils spectraux correspondants, lesquels sont des courbes lorentziennes. Ceci fait objet du quatrième chapitre.

Enfin, ce travail se termine par une conclusion générale et quelques références.

# Chapitre 1

## LES TRANSITIONS NUCLEAIRES

### 1.1 Les caractéristiques du noyau: notions de nucléides, isobares, isotones et isotopes

Un nucléide est un type d'atome caractérisé par le nombre de protons et de neutrons qu'il contient ainsi que par l'état d'énergie nucléaire dans lequel il se trouve. Dans le tableau de Mendeleïev tout élément chimique  $X$  est représenté par la notation  $^A_Z X$ ;  $A$  est appelé le nombre de masse; c'est le nombre total de nucléons (protons et neutrons);  $Z$  est appelé le nombre atomique ou numéro atomique et est le nombre total des électrons. La charge électrique nucléaire totale est donc  $Q = +Ze$ , le cortège électronique possédant alors une charge totale  $Q = -Ze$ , assurant ainsi la neutralité électrique d'un atome [Greenwood and Gibb, 1971, Janot, 1972].

De ce qui précède, on distingue les isobares, les isotones et les isotopes. Les isobares sont des nucléides de même nombre de masse  $A$  mais de numéro atomique  $Z$  différents. Les isotones sont des nucléides de même nombre de neutrons mais de nombre de masse  $A$  différents. Les isotopes (d'un certain élément chimique) sont les nucléides partageant le même nombre de protons (caractéristique de cet élément ou numéro atomique), mais ayant un nombre de neutrons différent (et donc nombre de masse  $A$  différent) [Greenwood and Gibb, 1971].

Des exemples des isotopes sont nombreux. Nous citons en passant le Carbone  $^{12}_6\text{C}$  et  $^{13}_6\text{C}$ ,  $^{63}_{29}\text{Cu}$  et  $^{64}_{29}\text{Cu}$ , les isotopes du Fer et bien d'autres. Le fer ( $\text{Fe}$ ) possède 28 isotopes connus, de nombre de masse variant de 45 à 72. Parmi ces isotopes, quatre sont stables,  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Fe}$  et  $^{58}\text{Fe}$ . L'isotope  $^{56}\text{Fe}$  est largement le plus abondant, suivi de  $^{54}\text{Fe}$  (qui est soupçonné d'être très faiblement radioactif, avec une demi-vie supérieure à  $3,1 \times 10^{22}$  années). La masse atomique standard du fer est de 55,845 *u.m.a.*

Le fer naturel est constitué de 4 isotopes stables  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Fe}$  et  $^{58}\text{Fe}$ . Le fer 57 ( $^{57}\text{Fe}$ ) est l'isotope du fer dont le noyau est constitué de 26 protons et de 31 neutrons. C'est

un isotope stable, couramment utilisé en spectroscopie Mössbauer du fait de la faible variation naturelle en énergie d'une transition nucléaire de 14,4 keV.

## 1.2 Les transitions nucléaires

### 1.2.1 Emission et absorption: résonance nucléaire

Un noyau à l'état de basse énergie peut évoluer vers le niveau excité par effet d'absorption d'un photon dont l'énergie coïncide avec l'énergie de transition nucléaire: c'est l'absorption.

L'émission spontanée est le processus inverse au cours duquel un noyau instable se désexcite spontanément vers le niveau inférieur en émettant un photon d'énergie  $h\nu$  si la transition entre  $E_e$  et  $E_f$  est radiative, comme représenté sur la figure 1.1.

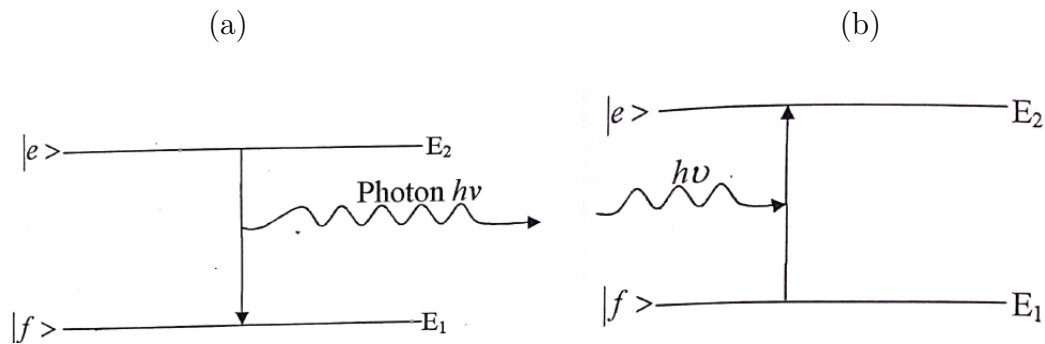


Figure 1.1: Processus d'émission et d'absorption: (a) émission, (b) absorption

### 1.2.2 Facteurs de la résonance nucléaire

#### 1.2.2.1 Largeur naturelle

La largeur naturelle est l'élargissement dû à la durée de vie finie d'un niveau. En effet, si nous considérons un noyau à l'état excité en absence d'une source, il peut évoluer vers l'état fondamental par émission spontanée. Le temps de vie fini de l'état excité donne naissance à la largeur naturelle qui est directement reliée à la probabilité de la transition nucléaire.

D'après la relation d'incertitude temps-énergie [Cohen-Tannoudji, 2007], [Odeurs, 1995], [Nahimana et al., 2020] [Martinho and Münck, 2010]:

$$\Delta E \cong \frac{\hbar}{\tau} \quad (1.1)$$

où  $\tau$  est le temps de vie moyen du niveau excité du noyau et

$$\hbar = \frac{h}{2\pi} \quad (1.2)$$

est la constante de Planck réduite. L'expression (1.1) définit la largeur naturelle du niveau considéré.

Le spectre des photons émis est décrit par une courbe de distribution de Lorentz de largeur à mi-hauteur  $\Gamma$  et dont l'intensité est donnée par [Loudon, 2000], [Nahimana et al., 2020], [Odeurs, 1995]

$$I(E) = \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (1.3)$$

où  $\Gamma$  est la largeur à mi-hauteur et  $E_0$  la valeur la plus probable de l'énergie de transition de l'état fondamental. Cette courbe est représentée sur la figure 1.2

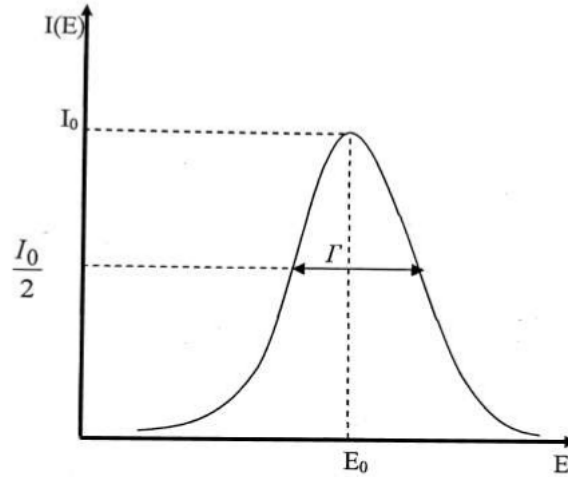


Figure 1.2: Largeur naturelle  $\Gamma$

### 1.2.2.2 Recul du noyau

#### Emission

Quand un noyau émet un photon d'énergie  $E_0 = E_2 - E_1$ , il passe du niveau excité d'énergie  $E_2$  au niveau fondamental d'énergie  $E_1$  comme l'indique la figure 1.1 (a) (avec  $E_1 \equiv E_f$  et  $E_2 \equiv E_e$ ).

Sa quantité de mouvement avant l'émission est supposée nulle. Après la transition, le noyau subit un recul, avec une vitesse  $\vec{v}$  et la quantité de mouvement est  $\vec{P}_R$ . L'énergie du photon émis est  $E_\gamma$  et sa quantité de mouvement est donnée par [Loudon, 2000], [Nahimana et al., 2020], [Odeurs, 1995]

$$|\vec{P}_\gamma| = \frac{E_\gamma}{c} \quad (1.4)$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière.

Schématiquement, nous avons

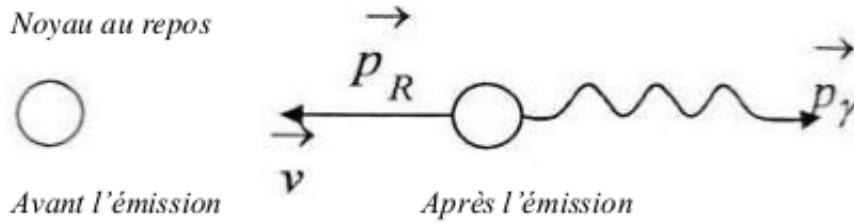


Figure 1.3: Emission avec recul

Tenant compte de la conservation de la quantité de mouvement, nous pouvons écrire

$$\begin{aligned} \vec{P}_R + \vec{P}_\gamma &= \vec{0} \\ |\vec{P}_R| &= |\vec{P}_\gamma| \end{aligned} \quad (1.5)$$

De (1.4) et (1.5), nous écrivons:

$$|\vec{P}_R| = \frac{E_\gamma}{c} \quad (1.6)$$

L'énergie de recul est donnée par:

$$E_R = \frac{P_R^2}{2M} \quad (1.7)$$

où  $M$  est la masse du noyau.

La conservation de l'énergie (avant et après l'émission) se traduit par:

$$E_2 = E_1 + E_R + E_\gamma \quad (1.8)$$

où

$$E_\gamma = h\nu \quad (1.9)$$

En mettant (1.9) dans (1.8), nous obtenons

$$h\nu = (E_2 - E_1) \left(1 + \frac{h\nu}{2Mc^2}\right)^{-1} \quad (1.10)$$

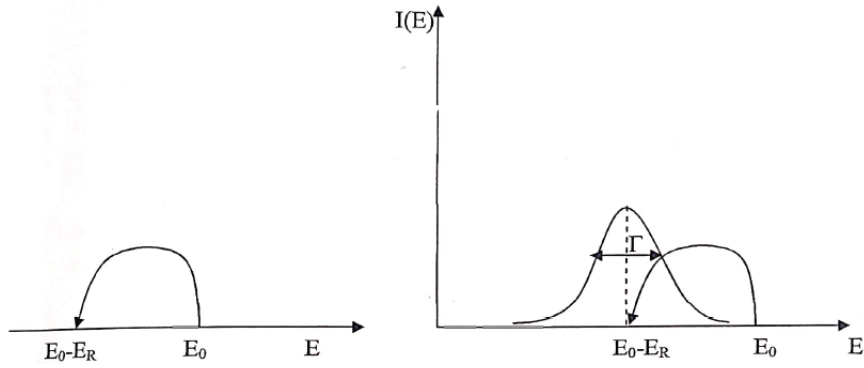


Figure 1.4: Effet de l'émission avec recul

Or,

$$\left(1 + \frac{h\nu}{2Mc^2}\right)^{-1} \approx 1 - \frac{h\nu}{2Mc^2} \quad (1.11)$$

En mettant (1.11) dans (1.10) nous obtenons

$$\begin{aligned} h\nu &= (E_2 - E_1) \left(1 - \frac{h\nu}{2Mc^2}\right) \\ &= E_0 \left(1 - \frac{h\nu}{2Mc^2}\right) \end{aligned} \quad (1.12)$$

Comme l'énergie du photon émis  $h\nu$  est très petite devant  $2Mc^2$ , nous pouvons remplacer dans le membre de droite de (1.12):

$$h\nu \cong E_0 \quad (1.13)$$

de sorte que:

$$\begin{aligned} h\nu &= E_0 \left(1 - \frac{h\nu}{2Mc^2}\right) \\ &= E_0 - \frac{E_0^2}{2Mc^2} \end{aligned} \quad (1.14)$$

L'expression (1.14) est évidente. Elle signifie que l'énergie du photon émis est inférieure à l'énergie de transition entre les deux niveaux.

Le terme

$$E_R = \frac{E_0^2}{2Mc^2} \quad (1.15)$$

est appelé énergie de recul du noyau.

En conséquence, le spectre de l'émission n'est plus centré sur  $E_0$ . Il est déplacé vers les énergies inférieures et la valeur la plus probable est  $E_0 - E_R$  comme le montre la figure 1.4. Ce décalage n'affecte pas la largeur naturelle.

## Absorption

L'absorption est le processus inverse de l'émission. Il se produit lorsqu'un noyau, au repos, absorbe un photon d'énergie  $E_\gamma = h\nu$ , lui permettant de passer du niveau fondamental  $|f\rangle$  d'énergie  $E_1$  au niveau excité  $|e\rangle$ , d'énergie  $E_2$  selon le schéma de la figure 1.1 (b) (avec  $E_1 \equiv E_f$  et  $E_2 \equiv E_e$ ).

Avant l'absorption, le noyau au repos, a une quantité de mouvement nulle. Après avoir absorbé un photon d'énergie  $h\nu$  et de quantité de mouvement  $\vec{P}_\gamma$ , ce noyau subit un mouvement de recul et sa quantité de mouvement devient  $\vec{P}_R$  comme représenté sur la figure 1.5.

Noyau au repos (avant l'absorption)

Noyau + photon (après l'absorption)



Figure 1.5: Absorption avec recul

En procédant de la même manière que pour l'émission, nous obtenons

$$\begin{aligned} h\nu &= E_0 \left( 1 + \frac{E_0}{2Mc^2} \right) \\ &= E_0 + \frac{E_0^2}{2Mc^2} \end{aligned} \tag{1.16}$$

Comme (1.16) l'indique, l'énergie du photon est supérieure à l'énergie de transition entre les deux niveaux. Le spectre d'absorption est décalé d'une légère distance vers les énergies supérieures.

En combinant le spectre d'émission et d'absorption, nous obtenons:

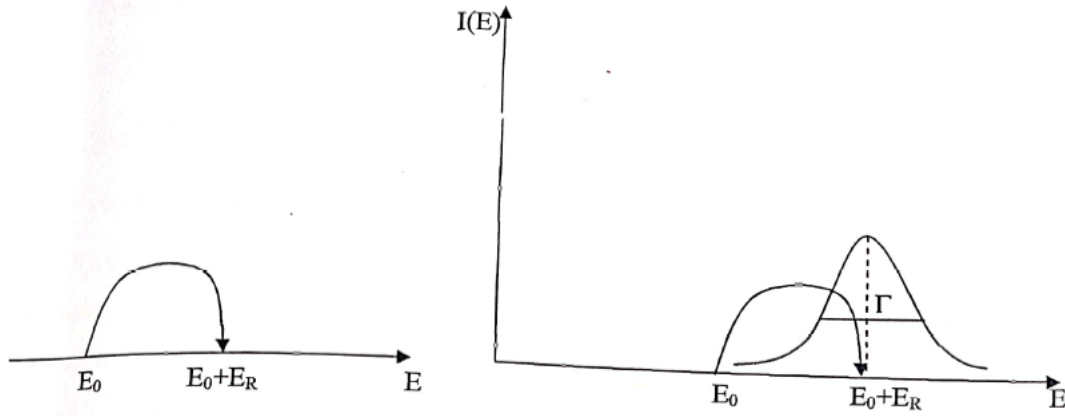


Figure 1.6: Effet d'absorption avec recul

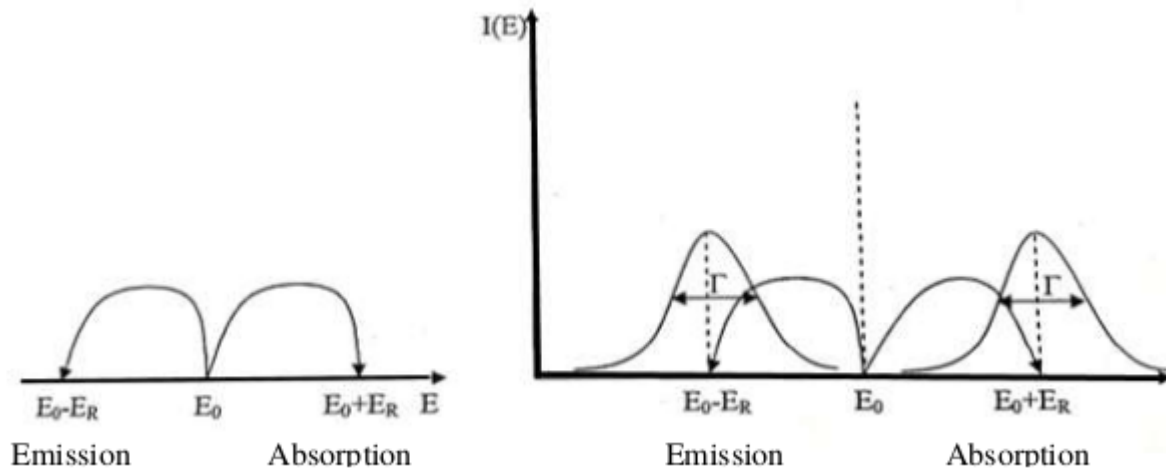
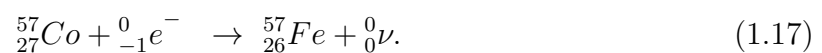


Figure 1.7: Effet d'émission et d'absorption avec recul

### 1.2.2.3 Caractéristiques du $^{57}\text{Fe}$

#### Désintégration du $^{57}\text{Fe}$

Le  $^{57}\text{Fe}$  est obtenu à partir de son élément radioactif (instable) parent, le  $^{57}\text{Co}$  de période de demi-vie de 270 jours. Celui-ci se désintègre par capture électronique pour donner le  $^{57}\text{Fe}$  à l'état excité ( $I = 5/2$ ) d'énergie de  $137\text{ keV}$  et de période de demi vie très courte de  $8,7\text{ ns}$ , selon la réaction



Le noyau fils, donc le  $^{57}\text{Fe}$  se désintègre à son tour vers l'état fondamental ( $I = 1/2$ ) en émettant une succession des photons parmi lesquels celui de  $14,4\text{ keV}$  appelé « transition Mössbauer ». Il y a aussi possibilité de transiter directement vers l'état fondamental par

conversion électronique [L.Cohen, 1976], [Aragam, 1964], [Odeurs, 1996], [Odeurs, 1995], [Martinho and Münck, 2010] comme le montre la figure 1.8 où C. E est la conversion électronique,  $T_{1/2}$  est le temps de demi-vie et  $1\text{ns} = 10^{-9}\text{s}$ .

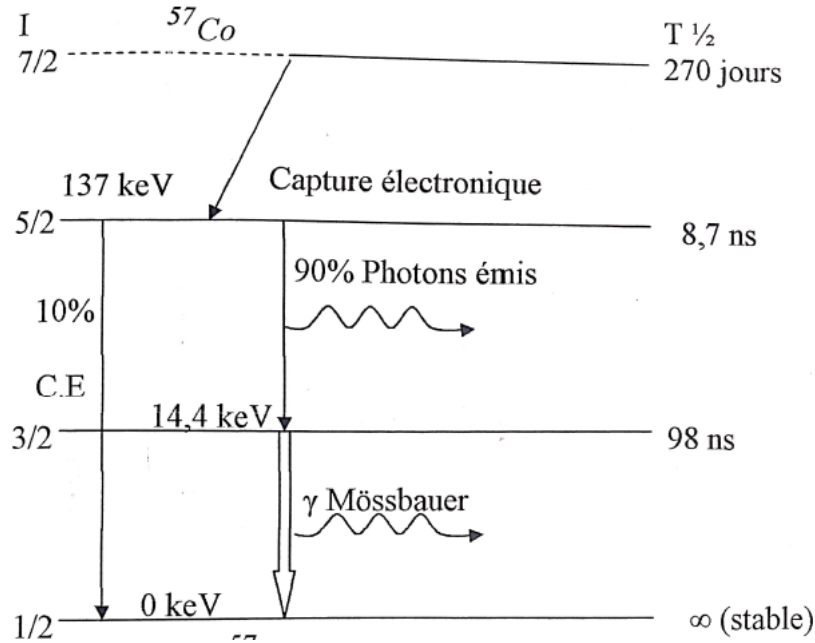


Figure 1.8: Désintégration du  $^{57}\text{Fe}$ .

### Energie de recul et la largeur naturelle du $^{57}\text{Fe}$

Pour trouver la largeur à mi-hauteur du spectre d'émission du noyau de  $^{57}\text{Fe}$ , nous appliquons la relation (1.1). Donc

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (1.18)$$

où  $\tau$  est donné par la relation [Odeurs and Hoy, 1999, Martinho and Münck, 2010]

$$\tau = \frac{T_{1/2}}{\ln 2} \quad (1.19)$$

En mettant (1.19) dans (1.18), nous obtenons, en substituant  $T_{1/2}$  et  $\hbar$  par leurs valeurs numériques:

$$\begin{aligned} \Gamma &= \frac{\ln 2 \times 1,05 \times 10^{-34}\text{ Js}}{98 \times 10^{-9}\text{ s}} \\ &= 4,64 \cdot 10^{-9}\text{ eV} \end{aligned} \quad (1.20)$$

Donc la courbe de Lorentz aura une largeur à mi-hauteur de  $\Gamma = 4,64 \cdot 10^{-9}\text{ eV}$ .

En appliquant la relation (1.15) pour le cas du  $^{57}\text{Fe}$ , l'énergie de recul sera donnée par

$$E_R = \frac{(14,4 \text{ keV})}{2 * 57 * 1.66 * 10^{-27} * (3 * 10^8)^2 \text{ kgm}^2\text{s}^{-2}} = 2 \text{ meV} \quad (1.21)$$

En comparant (1.20) et (1.21), nous constatons que, pour le  $^{57}\text{Fe}$ , la largeur naturelle est beaucoup plus petite que l'énergie de recul  $E_R$ . Pour les transitions nucléaires, l'écart entre les centres des raies d'absorption et d'émission étant deux fois l'énergie de recul, l'énergie des photons ne parvient pas à compenser cette différence.

En conséquence, les photons émis ne seront pas absorbés par le noyau et donc la résonance nucléaire n'est pas possible car  $E_R \gg \Gamma$ .

#### 1.2.2.4 Effet Doppler

Si une source contenant des noyaux excités émettant des photons de fréquence  $\nu_0$  et animée d'une vitesse  $v$  dans la direction du mouvement de la source, s'approche ou s'éloigne d'un récepteur fixe contenant des noyaux à l'état fondamental, ce dernier reçoit un photon de fréquence  $\nu'$  donnée par [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Odeurs, 1996]:

$$\nu' = \nu_0 \left( 1 \pm \frac{v}{c} \right) \quad (1.22)$$

où  $v$  est la vitesse de la source et  $c$  la vitesse de la lumière. Le signe + indique que la source s'approche du récepteur et le signe - dans le cas contraire. Cette variation apparente de la fréquence est appelée effet Doppler et est décrit par (1.22).

#### 1.2.2.5 Elargissement thermique

Considérons un gaz d'atomes émettant de la lumière à la fréquence  $\nu_{ij}$  pendant qu'ils se déplacent par rapport à l'observateur fixe, à la vitesse  $v$ .

La fréquence  $\nu'$  perçue par l'observateur est donnée par [Janot, 1972], [Nahimana et al., 2020], [Martinho and Münck, 2010]

$$\nu' = \nu_{ij} \left( 1 \pm \frac{v}{c} \right) \quad (1.23)$$

où le signe + indique que les atomes émetteurs se dirigent vers l'observateur et le signe - décrit l'éloignement.

Chaque atome du gaz possède une composante de vitesse différente de celle des autres atomes qui forment l'ensemble, ce qui fait que les atomes du gaz ont des composantes de vitesses différentes dans la direction de l'observateur, et par conséquent ils ont des fréquences différentes à la résonance.

La fonction de distribution des fréquences de l'ensemble des noyaux des atomes du gaz, appelée distribution des fréquences par effet Doppler sera donc la convolution d'une courbe lorentzienne et d'une courbe gaussienne, ce qui définit par ailleurs le profil de Voigt [Odeurs and Hoy, 1999, Martinho and Münck, 2010], comme le montre la figure 1.9. L'émetteur et l'absorbeur (récepteur) n'étant pas au repos, il faut tenir compte

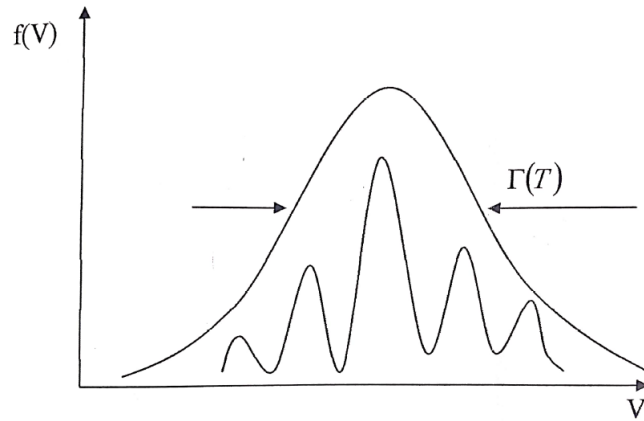


Figure 1.9: Élargissement des raies d'émission et d'absorption par effet Doppler et élargissement thermique.

de l'agitation thermique pour compenser la différence du décalage de l'énergie et dans le souci d'augmenter la largeur de la raie. Cette dernière (toujours centré sur  $E_0 - E_R$  ou  $E_0 + E_R$ ) peut être du même ordre de grandeur que l'énergie de recul.

En effet, si la température de la matrice solide augmente, la vitesse moyenne des atomes augmente aussi permettant ainsi élargissement des spectres, appelé « élargissement thermique ».

Cela améliore les conditions favorables permettant le recouvrement partiel des raies d'émission et d'absorption. On a donc une fluorescence de résonance [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Abragam, 1964], [Odeurs, 1996]

Dans la zone de recouvrement, on pourrait avoir l'absorption nucléaire résonante. Plus cette zone est petite, plus l'absorption nucléaire est faible et elle croit dans le cas contraire. De plus, si la température diminue, la zone de recouvrement diminue de sorte que l'absorption résonnante devrait aussi diminuer.

En définitive, on pensait que l'absorption nucléaire résonnante augmente avec la température.

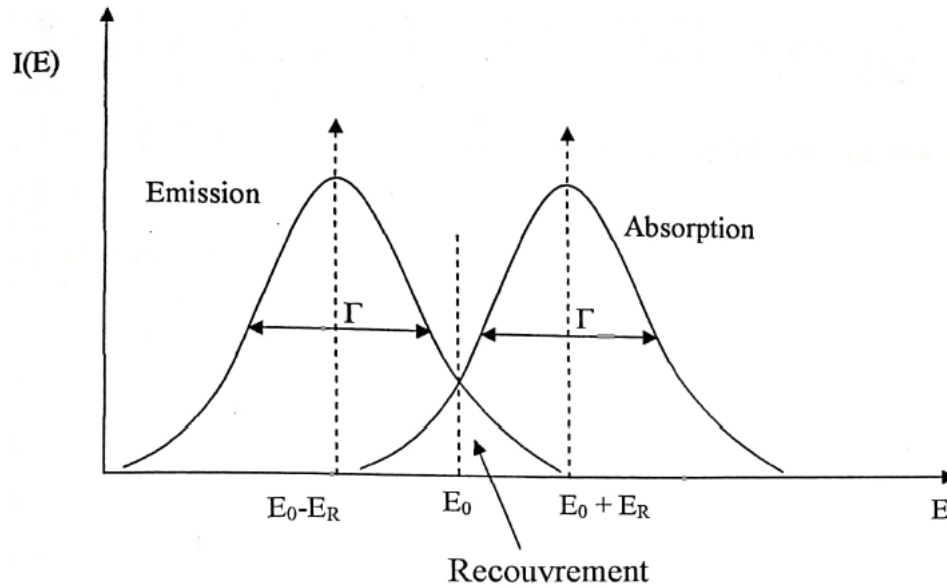


Figure 1.10: Recouvrement partiel des spectres dû à l'élargissement thermique par effet Doppler.

## 1.3 Effet Mössbauer

### 1.3.1 Historique

C'est en 1958 que Mössbauer faisait les expériences avec l'iridium ( $^{191}\text{Ir}$ ) dans le but d'observer la façon dont l'absorption nucléaire résonnante pourrait avoir lieu dans cet isotope avec la plus faible température possible. Signalons en passant que jusqu'à cette année, l'effet Doppler et l'élargissement thermique étaient les seuls moyens utilisés pour observer l'absorption résonnante des rayons gamma. C'est ainsi qu'il a plongé les sources (émetteurs) et les absorbeurs (récepteurs) dans l'azote liquide ( $-197^\circ\text{C}$ ).

A sa grande surprise, il trouva que l'absorption résonnante augmentait très fortement!

Mössbauer a très vite compris la raison: ce n'est pas un seul noyau qui recule, mais plutôt tous les noyaux de l'émetteur et/ou de l'absorbeur de sorte que l'énergie de recul soit négligeable. Il faut donc que ces noyaux soient incorporés dans une matrice (état) solide.

### 1.3.2 Définition de l'effet Mössbauer

L'effet Mössbauer est un phénomène d'émission ou d'absorption résonnante d'un rayonnement gamma ( $\gamma$ ) sans perte d'énergie (due au recul du noyau) et avec un élargissement thermique minimal (la largeur de la raie est la largeur naturelle)[L.Cohen, 1976, Odeurs and Hoy, 1999, Martinho and Münck, 2010].

Dans un solide, l'atome (et donc le noyau émetteur ou absorbeur) est lié au réseau. La

quantité de mouvement et l'énergie de recul, lors de l'absorption ou de l'émission d'un photon, sont transmises et encaissées par le cristal tout entier. Cet effet dépend de la fraction  $f$ , fraction des noyaux qui absorbent ou émettent sans recul.

### 1.3.3 Fraction sans recul

La fraction sans recul ou facteur de Lamb-Mössbauer [Janot, 1972], [Nahimana et al., 2020], [Odeurs, 1996], [Martinho and Münck, 2010] représente la probabilité pour qu'un noyau, se trouvant dans une matrice solide, puisse subir une transition résonnante sans recul du noyau ou perte d'énergie par vibration ou excitation de phonons.

Cette fraction est donnée par:

$$f = e^{-k_\gamma^2 \langle x^2 \rangle} \quad (1.24)$$

où  $k_\gamma$  est la grandeur du vecteur d'onde de la radiation  $\gamma$  et  $\langle x^2 \rangle$  le déplacement quadratique moyen représentant la moyenne de l'amplitude de vibration du noyau autour de sa position d'équilibre.

Pour le modèle du solide de Debye,  $\langle x^2 \rangle$  est donné par [Greenwood and Gibb, 1971], [Abragam, 1964],[Martinho and Münck, 2010]:

$$\langle x^2 \rangle = \frac{3\hbar^2}{Mk_\theta\theta_D} \left[ \frac{1}{4} \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^2 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{y}{e^y - 1} dy \right] \quad (1.25)$$

où

$$y = \frac{\hbar\omega_D}{k_B T}, \quad (1.26)$$

$M$  étant la masse du noyau,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température en kelvin.  $\theta_D$  est appelé température de Debye et est définie par:

$$\hbar\omega_D = k_B\theta_D \quad (1.27)$$

avec  $\omega_D$ , la fréquence maximale du mode de vibration. Comme

$$k_\gamma \hbar = \frac{E_\gamma}{c}, \quad (1.28)$$

et que l'énergie de recul est donnée par:

$$E_R = \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2}, \quad (1.29)$$

(1.24) devient, après y avoir incorporé (1.25),

$$f = \exp \left\{ -\frac{3E_R}{k_B\theta_D} \left[ 1 + 4 \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^2 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{y}{e^y - 1} dy \right] \right\} \quad (1.30)$$

En simplifiant (1.30) pour certaines limites de  $T$ , nous aboutissons à :

$$f = \exp \left\{ -\frac{E_R}{k_B\theta_D} \left[ \frac{3}{2} + \pi^2 \frac{T^2}{\theta_D^2} \right] \right\} \quad \text{si } T \ll \theta_D; \quad (1.31)$$

$$f = \exp \left[ -\frac{3E_R}{2k_B\theta_D} \right] \quad \text{si } T \rightarrow 0; \quad (1.32)$$

$$f = \exp \left[ -\frac{6E_RT}{2k_B\theta_D^2} \right] \quad \text{si } T \geq \theta_D. \quad (1.33)$$

### 1.3.4 Observation et mesure de l'effet Mössbauer

L'observation du spectre Mössbauer se fait en utilisant une source radiative contenant un isotope radioactif (instable) et absorbant (absorbeur) renfermant des atomes du même type que l'isotope radioactif, mais à l'état fondamental (stable). Un détecteur ou un compteur proportionnel compte le nombre de photons émis par la source et transmis à travers l'absorbeur.

Pour observer les spectres de résonance, la source (absorbeur) est animée d'un mouvement de vitesse  $\vec{v}$  par rapport à l'absorbeur (source) afin de compenser et modifier l'énergie de photons d'une quantité [Cohen-Tannoudji, 2007], [Nahimana et al., 2020], [Odeurs and Hoy, 1999]

$$\begin{aligned} \Delta E &= \frac{v}{c} (E_2 - E_1) \\ &= \frac{v}{c} E_0 \end{aligned} \quad (1.34)$$

où  $E_0$  est l'énergie de transition,  $v$  la vitesse relative de la source par rapport à l'absorbeur et  $c$  la vitesse de la lumière. L'échelle des énergies est exprimée en unités de vitesse (en

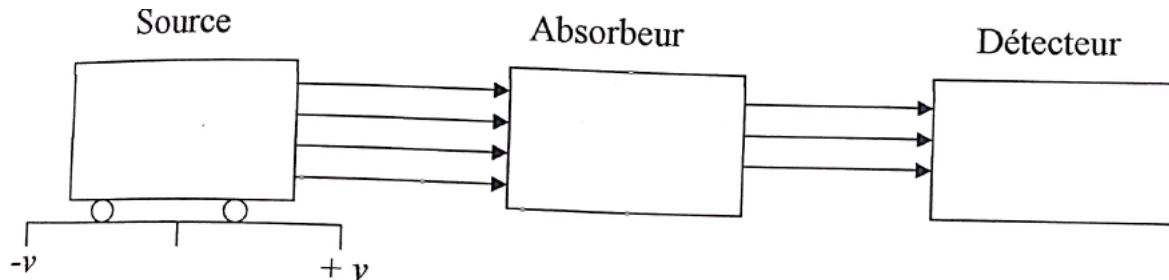


Figure 1.11: Schéma d'observation de l'effet Mössbauer

$\text{mm/s}$ ). En mesurant la réponse du détecteur pour différentes valeurs de  $v$ , on obtient un spectre de résonance qui est une lorentzienne de largeur  $2\Gamma$ .

Le spectre Mössbauer s'obtient ainsi en considérant la variation du taux de comptage (fonction de variation du nombre de photons absorbés de manière résonnante par l'absorbeur) en fonction de la vitesse  $v$ .

## 1.4 Déplacement isomérique

Dans une expérience Mössbauer [Greenwood and Gibb, 1971], [Janot, 1972], [Loudon, 2000], [Abragam, 1964], on a besoin d'une source radiative et d'un absorbeur contenant des noyaux identiques à ceux de la source mais à l'état fondamental.

L'énergie de transition Mössbauer contient un terme correspondant à la différence entre les effets de variation du volume nucléaire dans les états excité et fondamental.

Cet effet dépend de la différence des densités de probabilité de présence des électrons dans la source et dans l'absorbeur et du rayon effectif des noyaux. En conséquence, l'énergie de transition Mössbauer sera légèrement différente dans la source et dans l'absorbeur, et le spectre est déplacé ; on ne peut plus observer la résonance centrée sur  $v = 0$ . Ce phénomène est appelé déplacement isomérique, noté  $\delta$  et son expression mathématique est la suivante [Janot, 1972]:

$$\delta = \frac{Ze^2}{10\varepsilon_0} \left\{ \sum_{n,s} [|\Psi_{n,s}^A|^2 - |\Psi_{n,s}^s|^2] \right\} (R_e^2 - R_f^2) \quad (1.35)$$

où le terme entre accolades représente la variation des densités électroniques au niveau des noyaux de l'absorbeur et ceux de la source.

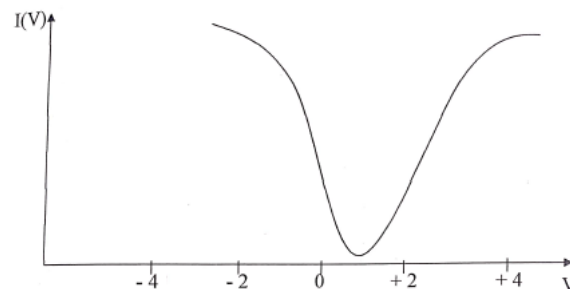


Figure 1.12: Spectre Mössbauer résultant d'un déplacement isométrique

$|\Psi_{n,s}^A(0)|^2$  et  $|\Psi_{n,s}^s(0)|^2$  sont les densités électroniques dans l'absorbeur et dans la source du niveau des noyaux en question.

En faisant quelques approximations sur les rayons nucléaires et en sommant sur tous les électrons, nous obtenons

$$\delta = \frac{Ze^2}{5\varepsilon_0} \left( |\Psi_A(0)|^2 - |\Psi_S(0)|^2 \right) R^2 \frac{\Delta R}{R} \quad (1.36)$$

avec  $\frac{\Delta R}{R}$ , appelé la variation relative du rayon nucléaire au cours de la transition.

L'expression (1.36) peut être négative, positive ou nulle.

Si  $\delta > 0$ , la résonance Mössbauer se produit pour une vitesse positive de la source. Donc, il faut augmenter l'énergie des photons qui atteignent l'absorbeur en déplaçant la source vers l'absorbeur.

Si  $\delta < 0$ , la résonance Mössbauer s'observe pour une vitesse négative de la source. Dans ce cas, on doit éloigner la source d'une vitesse  $v$  pour diminuer l'énergie des photons qui atteignent l'absorbeur.

Si  $\delta = 0$ , le déplacement isomérique est nul, c'est-à-dire que les environnements sont les mêmes dans la source et dans l'absorbeur. La résonance du spectre Mössbauer sera centrée à  $v = 0$ .

Le déplacement isomérique ou déplacement chimique peut être utilisé pour caractériser les substances par le biais de l'étage d'oxydation, les positions d'un isotope Mössbauer dans une substance, la densité électronique au niveau du noyau, les liaisons chimiques, c'est-à-dire, le nombre de coordination et la nature des liaisons chimiques mettant en jeu l'isotope étudié [Aragam, 1964], [Odeurs, 1996], [Martinho and Münck, 2010].

## Chapitre 2

# INTERACTIONS HYPERFINES DU NOYAU

### 2.1 Introduction

Un atome est constitué d'un noyau (découvert en 1911 par Rutherford) autour duquel « gravite » une sorte de nuage composé d'électrons et portant l'essentiel de la masse. Ces électrons se repoussent les uns les autres mais restent confinés autour du noyau car celui-ci possède une charge électrique positive qui les attire. Le noyau est quant à lui constitué de protons chargés positivement et de neutrons (découverts en 1932 par Chadwick), de charge nulle. Les particules constituant le noyau atomique sont appelées les nucléons.

Etant donné que le noyau se trouve dans un environnement électrique constitué par les électrons de l'atome auquel ils appartiennent et d'autres noyaux voisins et leurs électrons, il subit des interactions électriques et magnétiques causées par ces derniers. Ces interactions dites hyperfines, sont généralement le déplacement isomérique, l'interaction quadripolaire électrique et l'interaction dipolaire magnétique.

### 2.2 Interactions électriques du noyau avec son environnement

#### 2.2.1 Moment quadripolaire électrique et gradient de champ électrique

L'énergie totale d'interaction électrique entre les charges nucléaires électriques (des protons d'un noyau) avec les charges électroniques qui les entourent (la plupart des cas des électrons de l'atome auxquels appartient le noyau en question ou les électrons des atomes

voisins de ce noyau), est donnée par l'expression:

$$E_p = \iiint_V \rho(\vec{r}) V(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (2.1)$$

où  $V(\vec{r})$  est le potentiel électrique créé par la distribution de charges au point  $P$  repéré par le vecteur position  $\vec{r}$  par rapport au centre du noyau (considéré comme origine des coordonnées),  $\rho(\vec{r})$  est la densité de charge nucléaire en ce point,  $V$  étant le volume où est concentrée la densité de charges  $\rho(\vec{r})$ .

En se plaçant en dimensions du noyau (quelque  $10^{-15}$  m),  $V(\vec{r})$  peut être remplacé par un développement au voisinage de l'origine:

$$V(\vec{r}) = V(0,0,0) + \sum_{\alpha,\beta} \left( \frac{\partial V}{\partial \alpha} \right)_{(0,0,0)} \alpha + \frac{1}{2} \sum_{\alpha,\beta=1}^3 \left( \frac{\partial^2 V}{\partial \alpha \partial \beta} \right)_{(0,0,0)} \alpha \beta + \dots \quad (2.2)$$

où  $\alpha, \beta = x, y, z$  sont les coordonnées du point  $P$  dans le noyau, dans un repère arbitrairement choisi.

En mettant la relation (2.2) dans (2.1), l'énergie d'interaction électrique s'écrit:

$$E_p = V(0,0,0) \iiint_V \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} + \sum_{\alpha} \left( \frac{\partial V}{\partial \alpha} \right)_{(0,0,0)} \iiint_V \alpha \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha,\beta} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial \alpha \partial \beta} \right)_{(0,0,0)} \iiint_V \alpha \beta \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (2.3)$$

Le premier terme:

$$V(0,0,0) \iiint_V \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} = V(0,0,0) .Ze = V(0,0,0) .Q \quad (2.4)$$

est le terme monopolaire et est l'interaction électrique entre le noyau et le milieu extérieur. Il s'interprète comme l'énergie potentielle si toute la charge  $Q$  était concentrée à l'origine. Il est le même quel que soit l'état du noyau et n'intervient pas au cours d'une interaction.  $Q$  est la charge électrique totale se trouvant à l'intérieur du volume  $V$ .

Le second terme est nul car le noyau possède un centre de symétrie.

Le troisième terme:

$$E_{qe} = \frac{1}{2} \sum_{\alpha,\beta} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial \alpha \partial \beta} \right)_{(0,0,0)} \iiint_V \alpha \beta \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (2.5)$$

est responsable de l'effet quadripolaire et pour cela il est appelé terme quadripolaire. On néglige les termes d'ordre supérieur.

En posant:

$$Q_{\alpha\beta} = \iiint_V (3\alpha\beta - \delta_{\alpha\beta} r^2) \rho(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (2.6)$$

où  $\delta_{\alpha\beta}$  est le delta de Kronecker, comme tenseur moment quadripolaire électrique du noyau, l'intégrale dans (2.5) devient

$$\iiint_V \alpha\beta \rho(\vec{r}) d^3\vec{r} = \frac{1}{3} \left[ Q_{\alpha\beta} + \iiint_V \delta_{\alpha\beta} r^2 \rho(\vec{r}) d^3\vec{r} \right] \quad (2.7)$$

où  $\alpha, \beta = x, y, z$ . En définissant le tenseur gradient de champ électrique comme

$$V_{\alpha\beta} = V_{\beta\alpha} = \left( \frac{\partial^2 V}{x_\alpha x_\beta} \right)_{(0,0,0)} \quad (2.8)$$

l'expression (2.5) s'écrit alors:

$$E_{qe} = \frac{1}{6} \sum_{\alpha,\beta} \left[ V_{\alpha\beta} Q_{\alpha\beta} + (V_{\alpha\beta}) \iiint_V \delta_{\alpha\beta} r^2 \rho(\vec{r}) d^3\vec{r} \right]. \quad (2.9)$$

En négligeant le gradient de champ des électrons au centre du noyau, nous aboutissons à

$$E_{qe} = \frac{1}{6} \sum_{\alpha,\beta} V_{\alpha\beta} Q_{\alpha\beta} \quad (2.10)$$

où le potentiel électrique (gradient de champ électrique) obéit à l'équation de Laplace:

$$\Delta V = \sum_{\alpha=\beta} V_{\alpha\beta} = 0 \quad (2.11)$$

Les tenseurs moment quadripolaire électrique et gradient de champs électrique ( $Q_{\alpha\beta}$  et  $V_{\alpha\beta}$ ,  $\alpha, \beta = x, y, z$ ) peuvent être représentés par les matrices symétriques suivantes:

$$Q_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} Q_{xx} & Q_{xy} & Q_{xz} \\ Q_{yx} & Q_{yy} & Q_{yz} \\ Q_{zx} & Q_{zy} & Q_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

et

$$V_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} V_{xx} & V_{xy} & V_{xz} \\ V_{yx} & V_{yy} & V_{yz} \\ V_{zx} & V_{zy} & V_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

Rappelons que  $Q_{\alpha\beta}$  est défini complètement par la forme du noyau tandis que  $V_{\alpha\beta}$  par les charges électriques extérieures en interaction avec le noyau.

Pour un système d'axes principaux (PAS),  $V_{\alpha\beta} = 0$  pour  $\alpha \neq \beta$ ,

$$E_{qe} = \frac{1}{6} \sum_{\alpha=\beta} V_{\alpha\beta} Q_{\alpha\beta} \quad (2.14)$$

et le tenseur gradient de champ électrique devient:

$$V_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} V_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & V_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & V_{zz} \end{pmatrix}. \quad (2.15)$$

Pour une symétrie cubique,

$$V_{xx} = V_{yy} = V_{zz} \quad (2.16)$$

et en vertu de l'équation de Laplace, cela n'est possible que si:

$$V_{\alpha\beta} = 0 \text{ pour } \alpha = \beta = x, y, z \quad (2.17)$$

Le gradient du champ électrique et le tenseur gradient de champ deviennent nul.

$$E_{qe} = 0 \text{ et } V_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

L'équation de Laplace offre des possibilités permettant de réduire les paramètres caractérisant le gradient de champ électrique. Nous introduisons alors le paramètre d'asymétrie  $\eta$  et le potentiel  $V$  (selon l'axe des  $Z$ ) tels que:

$$V \equiv V_{zz} \quad (2.19)$$

et

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{q}, \quad (2.20)$$

avec  $V_{zz} \geq V_{yy} \geq V_{xx}$  et  $0 \leq \eta \leq 1$ , qui définissent l'environnement électronique dans lequel se trouve le noyau.

## 2.2.2 Hamiltonien quadripolaire électrique

Dans la suite nous considérons un noyau de spin  $I$  (normalement  $\vec{I} = \vec{L} + \vec{S}$  mais  $\vec{L}$  est négligé pour des raisons évidentes) qui interagit avec son environnement. Par exemple un noyau se trouvant dans un réseau est entouré d'atomes, d'électrons, peut-être de dipôles électriques, etc. Nous voulons connaître comment l'interaction entre le noyau et les charges qui l'entourent influence les niveaux nucléaires.

Le hamiltonien total d'un système "noyau de spin  $I$  interagissant avec son environnement électrique" ou plus précisément un noyau de moment quadripolaire  $Q$  soumis à un gradient de champ électrique  $V_{\alpha\beta}$  se compose d'un hamiltonien du noyau libre (sans aucune

interaction)  $H_N$  ajouté du hamiltonien d'interaction dite quadripolaire  $H_Q$ , de sorte que son expression s'écrive [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Abragam, 1964]:

$$H = H_N + H_Q \quad (2.21)$$

Dans le cas des noyaux de spin  $I > \frac{1}{2}$ , le hamiltonien quadripolaire s'exprime par l'expression:

$$H_Q = \frac{eQ}{6\hbar^2 I (2I - 1)} \sum_{\alpha, \beta=x, y, z} V_{\alpha\beta} \left[ \frac{3}{2} (I_\alpha I_\beta + I_\beta I_\alpha) - \delta_{\alpha\beta} I^2 \right] \quad (2.22)$$

de sorte que le hamiltonien totale s'écrive:

$$H = H_N + \frac{eQ}{6\hbar^2 I (2I - 1)} \sum_{\alpha, \beta=x, y, z} V_{\alpha\beta} \left[ \frac{3}{2} (I_\alpha I_\beta + I_\beta I_\alpha) - \delta_{\alpha\beta} I^2 \right] \quad (2.23)$$

Dans le cas de PAS (c'est-à-dire pour  $V_{\alpha\beta} = 0$  pour  $\alpha \neq \beta$ ),  $H_Q$  se réduit à:

$$H_Q = \frac{eQ}{6\hbar^2 I (2I - 1)} \sum_{\alpha=x, y, z} V_{\alpha\alpha} (3I_\alpha^2 - I^2), \quad (2.24)$$

et pour un système d'axes convenablement choisi  $\alpha, \beta = x, y, z$  nous avons:

$$H = H_N + \frac{eQ}{6\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ V_{xx} (3I_x^2 - I^2) + V_{yy} (3I_y^2 - I^2) + V_{zz} (3I_z^2 - I^2) \right] \quad (2.25)$$

En tenant compte des relations (2.19) et (2.20) ( avec  $V_{zz} = eq$  ) la relation (2.24) s'écrit:

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \eta (I_x^2 - I_y^2) \right], \quad (2.26)$$

et pour  $\eta = 0$ , nous avons:

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2). \quad (2.27)$$

Dans un environnement du noyau un champ électrostatique non homogène comme celui créé par des électrons, la dégénérescence  $2I + 1$  d'un état de spin  $I$  est levée partiellement par l'interaction quadripolaire si  $I > \frac{1}{2}$ .

L'interaction d'un noyau de moment quadripolaire  $Q$  avec un champ électrique de symétrie axiale et non homogène de gradient  $q$  conduit à une séparation du niveau de moment  $I$  en sous niveaux de nombre  $m_I$  différents, l'énergie d'un niveau de moment  $I$  et de nombre quantique magnétique  $m_I$  étant donnée par:

$$E_Q = \frac{e^2 q Q}{4I(2I - 1)} \left[ 3m_I^2 - I(I + 1) \right] \quad (2.28)$$

## 2.2.3 Valeurs et vecteurs propres de l'opérateur quadripolaire électrique $H_Q$

### 2.2.3.1 Pour un système d'axes principaux (PAS)( $\eta = 0$ )

Les valeurs propres de l'interaction quadripolaire sont déterminées par l'équation aux valeurs propres, donnée par l'expression:

$$H|\psi\rangle = E\psi \Leftrightarrow (H_N + H_Q)|\psi\rangle = (E_N + E_Q)|\psi\rangle. \quad (2.29)$$

où  $H$ ,  $H_N$  et  $H_Q$  sont définis dans les paragraphes précédents,  $E_N$  et  $E_Q$  étant respectivement les valeurs propres des opérateurs de  $H_N$  et  $H_Q$ , obéissant aux équations:

$$H_N|\psi\rangle = E_N|\psi\rangle \text{ et } H_Q|\psi\rangle = E_Q|\psi\rangle. \quad (2.30)$$

En se convenant d'écrire le vecteurs propre du système  $|\psi\rangle$  comme:

$$|\psi\rangle = |E_N, I, m_I\rangle \quad (2.31)$$

où,  $I$  caractérise la valeur propre ( $\hbar^2 I(I+1)$ ) de  $I^2$ ,  $m_I$  la valeur propre ( $\hbar m_I$ ) de  $I_z$ , nous avons explicitement (pour une symétrie axiale):

$$\begin{aligned} (H_N + H_Q)|\psi\rangle &= \left[ H_N + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I(2I-1)} (3I_z^2 - I^2) \right] |E_N, I, m_I\rangle \\ &= \left\{ E_N + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \right\} |E_N, I, m_I\rangle \end{aligned}, \quad (2.32)$$

à condition que ( $I^2$ ,  $I_z$  et  $H_N$  commutent) et les valeurs propres sont données par:

$$I^2|E_N, I, m_I\rangle = \hbar^2 I(I+1)|E_N, I, m_I\rangle; \quad I \text{ peut prendre les valeurs } 0, \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}, 2, \dots \quad (2.33)$$

$$I_z|E_N, I, m_I\rangle = \hbar m_I|E_N, I, m_I\rangle; \quad -I \leq m_I \leq I \quad (2.34)$$

$$H_N|E_N, I, m_I\rangle = E_N|E_N, I, m_I\rangle. \quad (2.35)$$

L'énergie totale est donnée par:

$$E_{m_I} = E_N + E_Q = E_N + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \quad (2.36)$$

où  $E_Q$  est donné par la relation (2.28):

$$E_Q = \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \quad (2.37)$$

En absence de toute interaction avec l'environnement les  $2I + 1$  vecteurs

$\{|E_N, I, m_I\rangle; -I \leq m_I \leq I\}$  correspondent tous à la même valeur propre  $E_N$  de l'opérateur  $H_N$ . Cette valeur propre  $E_N$  est donc  $2I + 1$  fois dégénérée.

### 2.2.3.2 Absence d'une symétrie axiale du gradient de champ électrique: ( $\eta \neq 0$ )

Le hamiltonien quadripolaire électrique  $H_Q$  (pour  $\eta \neq 0$ ) est donné par l'expression (2.26):

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \eta (I_x^2 - I_y^2) \right]; I > \frac{1}{2} \quad (2.38)$$

La matrice de  $H_Q$  est représenté, dans la BON  $\{|E_N, I, m_I\rangle; -I \leq m_I \leq I\}$ , par une matrice carrée de dimension  $(2I + 1) \times (2I + 1)$  dont les éléments sont donnés par  $H_{Qij}; 1 \leq i, j \leq 2I + 1$ . Ses valeurs propres sont déterminées par l'équation caractéristique suivante:

$$\begin{vmatrix} H_{Q11} - \lambda & H_{Q12} & \cdots & H_{Q1n} \\ H_{Q21} & H_{Q22} - \lambda & \cdots & H_{Q2n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ H_{Qn1} & H_{Qn2} & \cdots & H_{Qnn} - \lambda \end{vmatrix} = 0 \quad (2.39)$$

On convient de noter pour simplifier:

$$|i = 1\rangle \equiv |E_N, I, m_I = -I\rangle, |i = 2\rangle \equiv |E_N, I, m_I = -I + 1\rangle, \dots, |i = 2I + 1\rangle \equiv |E_N, I, m_I = I\rangle.$$

Les opérateurs  $I_x$  et  $I_y$  sont reliés aux opérateurs  $I_+$  et  $I_-$  (de valeurs propres connues) par les relations:

$$I_{\pm} = I_x \pm iI_y, \text{ soit } I_x = \frac{I_+ + I_-}{2} \text{ et } I_y = \frac{I_+ - I_-}{2i}, \quad (2.40)$$

avec:

$$I_{\pm}|E_N, I, m_I\rangle = \hbar\sqrt{I(I+1) - m_I(m_I \pm 1)}|E_N, I, m_I \pm 1\rangle \quad (2.41)$$

$$I_+|E_N, I, m_I = I\rangle = 0 \text{ et } I_-|E_N, I, m_I = -I\rangle = 0 \quad (2.42)$$

On peut montrer, après un calcul relativement long que la valeur propre est donnée par:

$$E_Q = \frac{e^2 q Q}{12} \left( 3m_I^2 - \frac{15}{4} \right) \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} = \frac{V_{zz} e Q}{4} \left( 3m_I^2 - \frac{15}{4} \right) \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}}; m_I = \pm \frac{1}{2}; m_I = \pm \frac{3}{2}. \quad (2.43)$$

Pour  $I > \frac{3}{2}$ , il n'y a pas de solution analytique.

## 2.2.4 Application pour le $^{57}\text{Fe}$

### 2.2.4.1 Eclatement quadripolaire de $^{57}\text{Fe}$

Nous considérons la transition entre les 2 premiers états du  $^{57}\text{Fe}$  (transition Mössbauer du  $^{57}\text{Fe}$ :  $\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ ), pour  $\eta = 0$ .

Etat fondamental:  $I = \frac{1}{2}$ ;  $m_I = \pm\frac{1}{2}$ ,  $E_{\pm\frac{1}{2}} = E_N - \frac{e^2qQ}{4}$ ;  $\Delta E_Q = 0$  est la différence énergétique entre deux sous-niveaux adjacents.

Premier état excité:  $I = \frac{3}{2}$ ;  $m_I = \pm\frac{1}{2}, \pm\frac{3}{2}$ ,  $E_{\pm\frac{1}{2}} = E_N - \frac{e^2qQ}{4}$ ,  $E_{\pm\frac{3}{2}} = E_N + \frac{e^2qQ}{4}$ ;  $\Delta E_Q = \frac{e^2qQ}{2}$ . Ceci est illustré dans la figure 2.1.

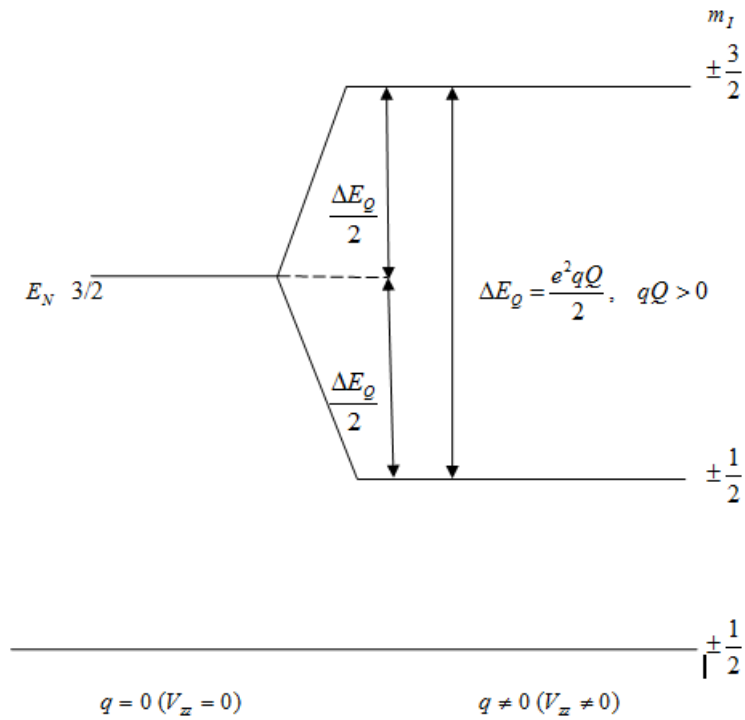


Figure 2.1: Eclatement (dédoublment) des niveaux d'énergie d'un noyau de  $^{57}\text{Fe}$  de spin  $I = \frac{3}{2}$ , dû à une interaction quadripolaire électrique ; symétrie axiale du gradient de champ électrique ;  $qQ > 0$ .

### 2.2.4.2 Transitions nucléaires

#### Règles de sélection

Si l'on compose deux moments cinétiques,  $j_1$ ,  $j_2$ , le moment cinétique total  $J$  (entier ou demi-entier) obéit à la règle de sélection suivante [Janot, 1972]:

$$|j_1 - j_2| \leq J \leq |j_1 + j_2|.$$

Pour  $M = m_1 + m_2$  ;  $-j_1 \leq m_1 \leq j_1$  et  $-j_2 \leq m_2 \leq j_2$ , et pour  $J$  donné on a  $2J + 1$  valeurs de  $M$ .

Pour la transition Mössbauer du  $^{57}\text{Fe}$  nous avons:

- où  $J = I_e = \frac{3}{2}$  ,  $j_1 = I_f = \frac{1}{2}$ ,  $j_2 = S = 1$  , la règle de sélection pour  $J$  devient:  $\frac{1}{2} \leq I_e \leq \frac{3}{2}$ ;
- $M$  ( $M = m_e$ ,  $m_1 = m_f$  et  $m_2 = m_\gamma$ ):  $m_e = m_f + m_\gamma \Rightarrow \Delta m = m_\gamma = m_e - m_f = 0, \pm 1$  qui est la règle de sélection pour  $M$ ;

avec  $S$  et  $m_\gamma$  étant respectivement le moment de spin et le nombre magnétique du photon.

### Transitions possibles

Avec ces règles de sélection, nous obtenons successivement les transitions suivantes:

$$\begin{aligned} \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = 1 \\ \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = -1 \\ \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = 1 \\ \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = 0 \\ \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = 0 \\ \left| E_N = 14,4 \text{ keV}, \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle &\rightarrow \left| E_N = 0 \text{ keV}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, m_\gamma = -1 \end{aligned}$$

La transition 1 de la figure 2.2 consiste en deux transitions dont l'énergie du photon est égale à  $E_N + \frac{\Delta E_Q}{2}$ , tandis que la transition 2 correspond à 4 transitions d'énergie  $E_N - \frac{\Delta E_Q}{2}$ .

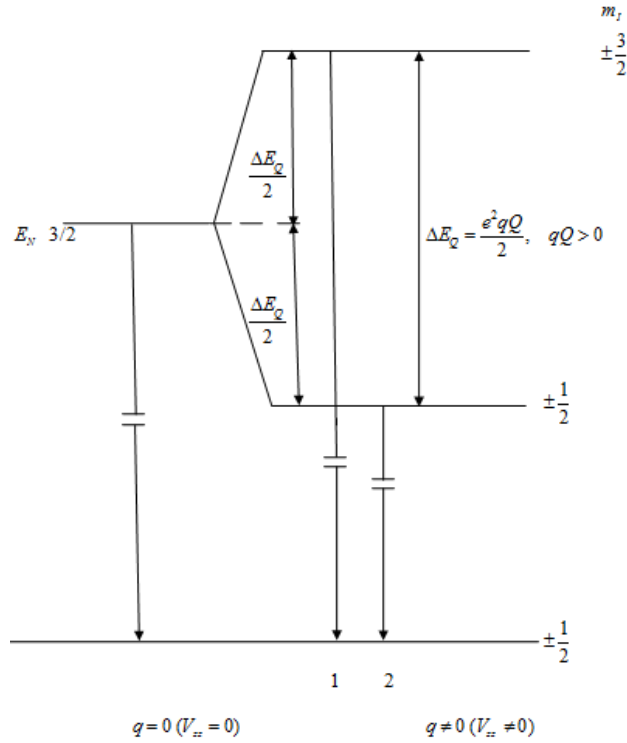


Figure 2.2: Transitions 1 et 2 relatives à la transition 14,4 keV de  $^{57}\text{Fe}$  soumis à une interaction quadripolaire électrique ; le cas de symétrie axiale du gradient de champ électrique,  $\eta = 0$ ;  $qQ > 0$

## 2.3 Interaction dipolaire magnétique

### 2.3.1 Moment magnétique du noyau

Un noyau, de spin nucléaire  $I$ , possède un moment magnétique, proportionnel à  $I$  et donné par:

$$\vec{\mu}_m = g\mu_N \vec{I} \quad (2.44)$$

où

$$\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p} \text{ et vaut } 5,05038 \times 10^{-27} \text{ JT}^{-1} \quad (2.45)$$

est le magnéton nucléaire,  $m_p$  et  $e$  la masse et la charge du proton,  $h$  et  $\hbar = \frac{h}{2\pi}$  étant respectivement la constante de Planck et la constante de Planck réduite;  $g$  est le “facteur  $g$ ” qui dépend des détails du moment cinétique total et de l’état du noyau.

### 2.3.2 Hamiltonien dipolaire magnétique: valeurs et vecteurs propres

L'interaction dipolaire magnétique se traduit par l'énergie de couplage donnée par [Janot, 1972], [Greenwood and Gibb, 1971]:

$$W_m = -\vec{\mu}_m \cdot \vec{B} \quad (2.46)$$

où  $\vec{B}$  est le champ magnétique extérieur dû à l'environnement et  $\vec{\mu}_m$  le moment magnétique du noyau.

Le hamiltonien d'interaction s'exprime par:

$$H_{DM} = -\vec{\mu}_m \cdot \vec{B} = -\gamma \vec{I} \cdot \vec{B} = -\frac{g\mu_N}{\hbar} \vec{I} \cdot \vec{B} = -\frac{g\mu_N}{\hbar} B I_z \quad (2.47)$$

où  $\gamma = \frac{g\mu_N}{\hbar}$  est la rapport gyromagnétique et nous avons considéré l'axe (OZ) parallèle au champ  $\vec{B}$ .  $I_z$  est la projection du spin nucléaire sur cet axe. Le hamiltonien total s'exprime par:

$$H = H_N + H_{DM} \quad (2.48)$$

$H_{DM}$  est le hamiltonien d'interaction et  $H_N$  est celui du noyau libre, de sorte que l'équation de Schrödinger indépendante du temps du système quantique ( $\vec{\mu} + \vec{B}_{exterieur}$ ) s'écrit:

$$H|\psi\rangle = E|\psi\rangle \Leftrightarrow (H_N + H_{DM})|\psi\rangle = (E_N + E_{DM})|\psi\rangle. \quad (2.49)$$

Les vecteurs propres  $|\psi\rangle = |E_N, I, m_I\rangle$  sont choisis de telle sorte que  $[H_N, H_{DM}] = 0$  et que

$$H_N|\psi\rangle = E_N|\psi\rangle \text{ et } H_{DM}|\psi\rangle = E_{DM}|\psi\rangle, \quad (2.50)$$

où  $E_N$  est la valeur propre de  $H_N$ ,  $I$  caractérise la valeur propre ( $\hbar^2 I(I+1)$ ) de  $I^2$ ,  $m_I$  la valeur propre  $\hbar m_I$  de  $L_z$ . Nous avons explicitement:

$$(H_N + H_{DM})|\psi\rangle = \{E_N - g\mu_N B m_I\} |E_N, I, m_I\rangle \quad (2.51)$$

où nous avons utilisé les expressions (2.34) et (2.35).

L'énergie totale est donnée par:

$$E_{m_I} = E = E_N + E_{DM} = E_N - g\mu_N B m_I \quad (2.52)$$

où:

$$E_{DM} = g\mu_N B m_I \quad (2.53)$$

En absence de toute interaction avec l'environnement les  $2I + 1$  vecteurs

$\{|E_N, I, m_I\rangle; -I \leq m_I \leq I\}$  correspondent tous à la même valeur propre  $E_N$  de l'opérateur  $H_N$ . Cette valeur propre  $E_N$  est donc  $2I + 1$  fois dégénérée.

### 2.3.3 Effet Zeeman

Appelé aussi dédoublement Zeeman ou éclatement Zeeman, l'effet Zeeman est le nom donné à la division des raies spectrales dans un champ magnétique externe. Cette séparation en sous niveaux est traduite par la relation (2.52) reprise ci-dessous:

$$E_{m_I} = E = E_N + E_{DM} = E_N - g\mu_N B m_I$$

En absence d'un champ magnétique extérieur, cette valeur de l'énergie,  $E_N$ , est donc  $2I + 1$  fois dégénérée car  $\vec{B} = \vec{0}$ .

Dû à la présence du champ magnétique  $\vec{B}$ , la dégénérescence est complètement levée car maintenant les niveaux d'énergie se distinguent par la valeur de  $m_I$  qui varie de  $-I \leq m_I \leq I$ : pour chaque triplet  $E_N, I, m_I$ , on a une énergie unique  $E_{E_N, I, m_I}$ : c'est l'effet Zeeman.

Pour les 2 premiers états du noyau de  $^{57}\text{Fe}$  plongé dans un champ magnétique  $\vec{B} // \text{OZ}$ , nous avons:

❖ état fondamental:  $I_f = \frac{1}{2}$ ;  $\{|E_f, \frac{1}{2}, m_f\rangle; m_f = \pm\frac{1}{2}\}$ : deux états associés à l'énergie  $E_f$ , si le champ magnétique  $\vec{B} = 0$ . L'énergie  $E_f$  du noyau libre (sans champ magnétique) est alors deux fois dégénérée,  $g_f = 0, 18$ ;

❖ premier état excité (ayant une énergie de 14,4 keV au-dessus de l'énergie de l'état fondamental):  $I_e = \frac{3}{2}$ ;  $\{|E_e, \frac{3}{2}, m_e\rangle; m_e = \pm\frac{1}{2}, \pm\frac{3}{2}\}$ : quatre états associés à l'énergie  $E_e$ , si le champ magnétique  $\vec{B} = 0$ . L'énergie  $E_e$  du noyau libre (sans champ magnétique) est alors quatre fois dégénérée,  $g_e = -0, 103$ .

Quand  $\vec{B} \neq \vec{0}$  (Effet Zeeman), le niveau fondamental se scinde en deux états associés à deux énergies différentes dont la différence est  $\Delta_f = 0, 18\mu_N B$ ; et quatre états associés à quatre énergies différentes pour l'état excité,  $\Delta_e = 0, 103\mu_N B$  étant la différence en énergie de deux états adjacents. Ceci est représenté dans la figure 2.3.

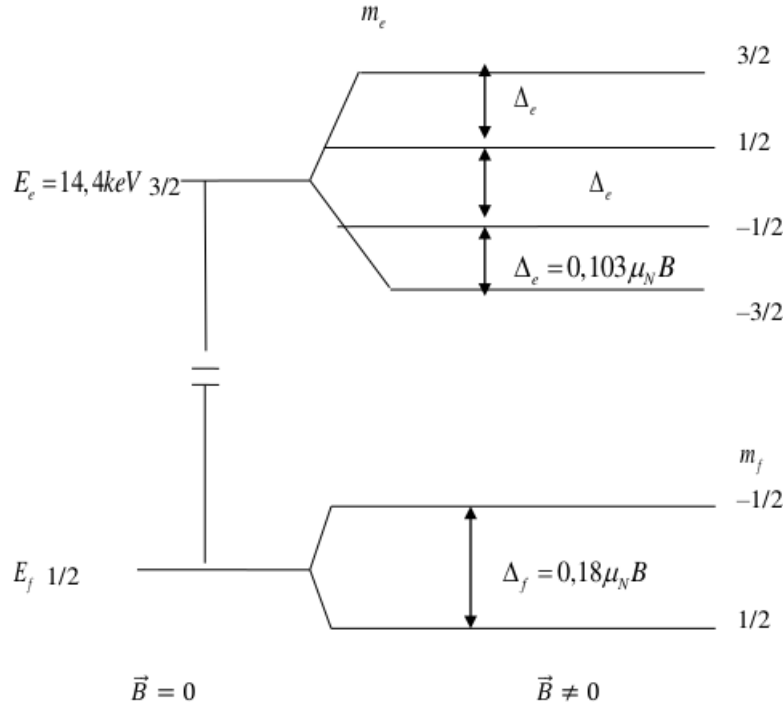


Figure 2.3: Effet Zeeman nucléaire pour les deux premiers états de  $^{57}\text{Fe}$ .

### 2.3.4 Transition nucléaire

En utilisant les règles de selection (section 2.2.4.2.1), nous définissons:

$$\begin{aligned} \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \otimes |\{0\}\rangle &= \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \otimes |1, 1\rangle = \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, 1 \right\rangle; \\ \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \otimes |\{0\}\rangle &= \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \otimes |1, -1\rangle = \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, -1 \right\rangle; \\ \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \otimes |\{0\}\rangle &= \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow a \left| \frac{1}{2}, 1; -\frac{1}{2}, 1 \right\rangle + b \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, 0 \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left| \frac{1}{2}, 1; -\frac{1}{2}, 1 \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, 0 \right\rangle; \\ \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \otimes |\{0\}\rangle &= \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow a \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, -1 \right\rangle + b \left| \frac{1}{2}, 1; -\frac{1}{2}, 0 \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left| \frac{1}{2}, 1; -\frac{1}{2}, 1 \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} \left| \frac{1}{2}, 1; \frac{1}{2}, 0 \right\rangle. \end{aligned}$$

comme vecteurs propres du moment cinétique total du système (noyau-photon). Les transitions  $\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$  et  $-\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$  ne sont pas permises par la règle de selection. Les constantes  $a$  et  $b$  sont des coefficients de Clebsch-Gordan qui peuvent être calculés [Cohen-Tannoudji, 2007].

Cela est illustré dans la figure 2.4.

En définissant les probabilités de transition comme le carré des coefficient de Clebsch Gordan, nous avons successivement [Janot, 1972]:

$$\begin{aligned} \text{transition 1: } p \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle &= (1)^2 = 1; \text{ transition 6: } p \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle = (1)^2 = 1; \\ \text{transition 2: } p \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle &= \left( \sqrt{\frac{2}{3}} \right)^2 = \frac{2}{3}; \text{ transition 3: } p \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle = \\ \left( \frac{1}{\sqrt{3}} \right)^2 &= \frac{1}{3}; \text{ transition 4: } p \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle = \left( \frac{1}{\sqrt{3}} \right)^2 = \frac{1}{3} \text{ et transition 5: } p \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle = \end{aligned}$$

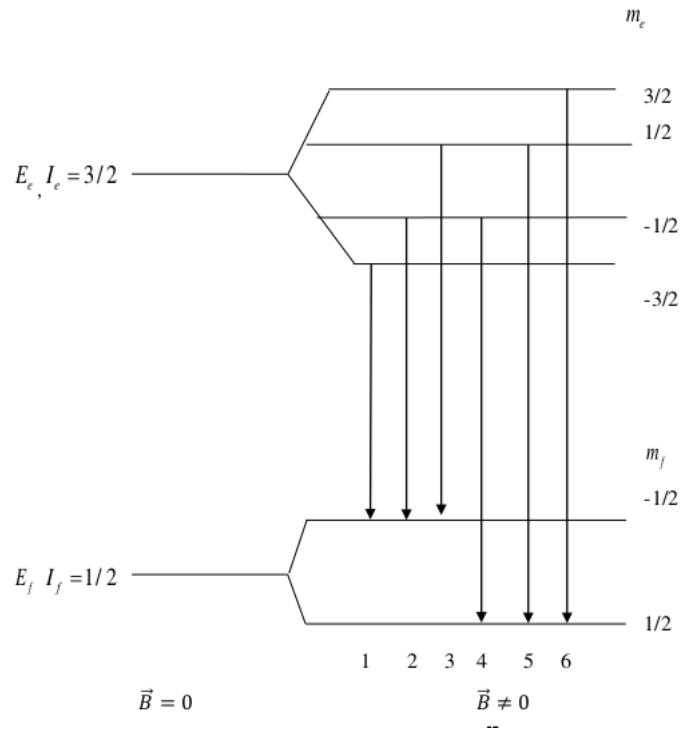


Figure 2.4: Les six transitions permises pour le  $^{57}\text{Fe}$  dans le cas de l'Effet Zeeman nucléaire, numérotées de 1 à 6 par ordre croissant de l'énergie du photon  $\gamma$ .

$$\left(\sqrt{\frac{2}{3}}\right)^2 = \frac{2}{3}.$$

*Intensité relative = probabilité de transition  $\times 3$ .*

*Proba de transition dans une direction = Intensité relative  $\times$  un facteur  $\Theta_{\Delta m}(\theta)$ .*

Cela est montré dans le tableau 2.1.

Tableau 2.1: Intensités relatives (4<sup>ème</sup> colonne), intensités totales en fonction de l'angle d'émission  $\theta$

Transition	$\Delta m = m_e - m_f$	Intensité relative: $I_{\Delta m}$	Dépendance angulaire: $\Theta_{\Delta m}(\theta)$	Intensité relative totale: $I_{\Delta m}(\theta) = I_{\Delta m} \cdot \Theta_{\Delta m}(\theta)$
1 : $(-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{3}{2})$	-1	3	$1 + \cos^2 \theta$	$3(1 + \cos^2 \theta)$
2 : $(-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2})$	0	2	$2 \sin^2 \theta$	$4 \sin^2 \theta$
3 : $(-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2})$	1	1	$1 + \cos^2 \theta$	$1 + \cos^2 \theta$
4 : $(+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2})$	-1	1	$1 + \cos^2 \theta$	$1 + \cos^2 \theta$
5 : $(+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2})$	0	2	$2 \sin^2 \theta$	$4 \sin^2 \theta$
6 : $(+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{3}{2})$	1	3	$1 + \cos^2 \theta$	$3(1 + \cos^2 \theta)$

Les intensités relatives des six transitions montrées dans la figure 2.4 sont proportionnelles à la « profondeur » des six résonances Mössbauer. L'angle  $\theta$  est l'angle entre la direction de  $OZ(//\vec{B})$  et la direction du détecteur.

## 2.4 Interactions quadripolaire électrique combinée à l'interaction dipolaire magnétique

### 2.4.1 Hamiltonien d'interaction: cas où $\vec{B} // OZ'$ , symétrie axiale ( $\eta = 0$ ) et $V_{zz} // OZ$

En présence simultanée d'interaction quadripolaire électrique et d'interaction dipolaire magnétique, le hamiltonien total,  $H$ , d'un noyau ayant un moment cinétique total caractérisé par  $I$ , dans le cas où  $\vec{B} // OZ'$ , symétrie axiale ( $\eta = 0$ ) et  $V_{zz} // OZ$ , est maintenant donnée par l'expression suivante:

$$H = H_N + H_{DM} + H_Q = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4 \hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2) \quad (2.54)$$

où

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4 \hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2) \quad (2.55)$$

$$H_{DM} = -\gamma B I_{z'} = -\frac{g \mu_N}{\hbar} B I_{z'} \quad (2.56)$$

Il est à noter ici que le hamiltonien total  $H$  contient les opérateurs  $I_{z'}$  et  $I_z$ , qui sont définis dans deux systèmes de référence:  $I_{z'}$  dans  $OX'Y'Z'$  et  $I_z$  dans  $OXYZ$ .

## 2.4.2 Champ magnétique $\vec{B}$ parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ : $\vec{B} // V_{zz} // OZ' // OZ$

Seulement si l'axe  $OZ'$  coïncide avec l'axe  $OZ$ , les trois observables  $H_N, H_{DM}$  et  $H_Q$  commutent, de sorte que leurs vecteurs propres communs sont  $\{|E_N, I, m_I\rangle \quad -I \leq m_I \leq I\}$ . Ces vecteurs sont également des vecteurs propres de  $H$  associés aux valeurs propres qui sont données par l'expression suivante:

$$E_{m_I} = E_N - g\mu_N B m_I + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \quad -I \leq m_I \leq I \quad (2.57)$$

L'expression (2.57) montre que pour une valeur donnée,  $I$ , caractérisant le moment cinétique total du noyau, les valeurs propres dépendent de la valeur de  $m_I$ .

La figure 2.5 montre les énergies  $\{E_{m_I}; -\frac{3}{2} \leq m_I \leq +\frac{3}{2}\}$  pour un spin  $I = \frac{3}{2}$ , comme c'est le cas du niveau Mössbauer de 14,4 keV de  $^{57}\text{Fe}$ , avec  $qQ > 0$ ;  $\eta = 0$ ;  $\vec{B} // V_{zz}$ ,  $\Delta' = \Delta + \frac{e^2 q Q}{2}$ ,  $\Delta'' = \Delta - \frac{e^2 q Q}{2}$ .

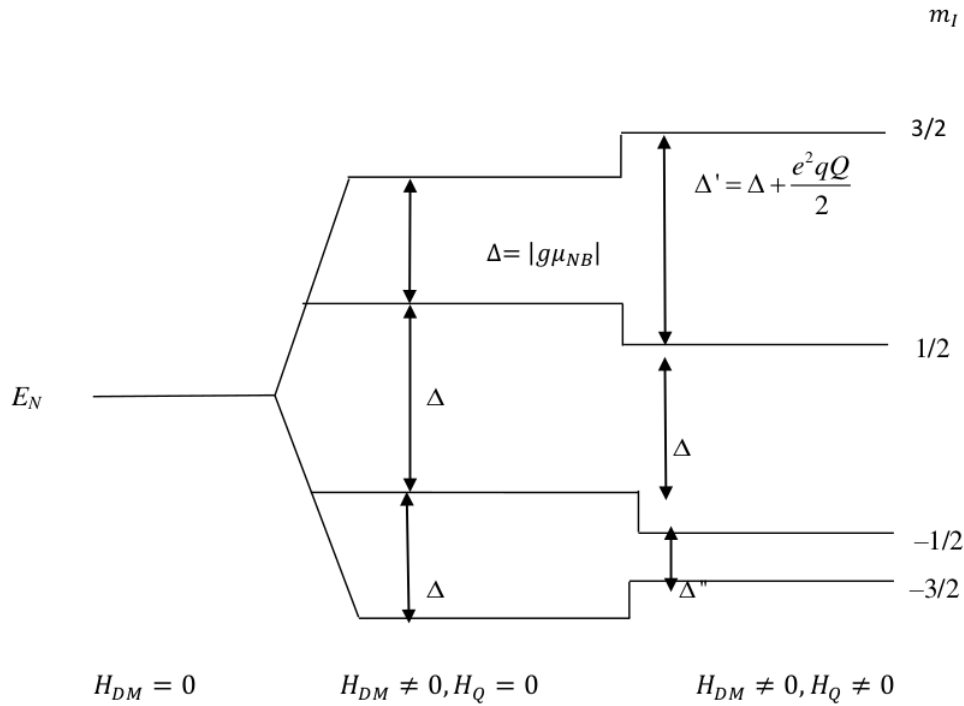


Figure 2.5: Interaction combinée dipolaire magnétique et quadripolaire électrique pour le niveau de 14,4 keV de  $^{57}\text{Fe}$ .

Les différences en énergie  $\Delta$ ,  $\Delta'$  et  $\Delta''$  découlent directement de l'expression (2.57) et sont les suivantes:

$$\Delta = |g\mu_N B|, \quad \Delta' = \Delta + \frac{e^2 q Q}{2}, \quad \Delta'' = \Delta - \frac{e^2 q Q}{2} \quad (2.58)$$

La figure 2.6 montre les transitions Mössbauer de  $^{57}\text{Fe}$  de cette interaction combinée: dipolaire magnétique et quadripolaire électrique dans l'absorbeur, où  $qQ > 0$ ;  $\Delta'' = \Delta_e - \frac{e^2 q Q}{2}$ ;  $\eta = 0$ ;  $\vec{B} \parallel V_{zz}$ .

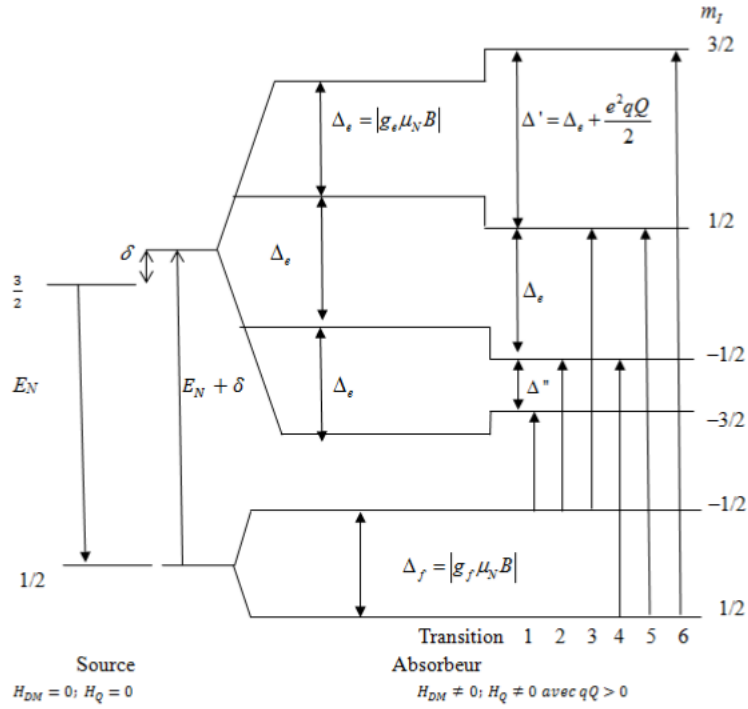


Figure 2.6: Transitions Mössbauer de  $^{57}\text{Fe}$  numérotées par ordre croissant de l'énergie.

Signalons que les intensités relatives des six transitions montrées dans la figure 2.6 sont proportionnelles à la « profondeur » des six résonances Mössbauer.

### 2.4.3 Champ magnétique $\vec{B}$ non parallèle au gradient de champ: ( $OZ' \nparallel OZ$ )

Si le champ magnétique  $\vec{B} \nparallel OZ'$ , donc  $OZ' \nparallel OZ$ , et avec l'hypothèse d'une symétrie axiale ( $\eta = 0$ ), on a le hamiltonien donné par l'expression (2.54), qui est recopiée ci-dessous:

$$H = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2) \quad (2.59)$$

Nous allons envisager la solution dans le cas où l'interaction quadripolaire électrique est petite par rapport à l'interaction dipolaire magnétique.

### 2.4.3.1 Interaction quadripolaire électrique plus petite que l'interaction dipolaire magnétique

#### Hamiltonien total

Choisissons deux systèmes de coordonnées:  $OXYZ$  et  $OX'Y'Z'$  (les deux origines coïncident). Nous supposons que l'axe des  $X$  se trouve dans le plan défini par  $OZ$  et  $OZ'$ . Nous avons supposé que le champ magnétique  $\vec{B} // OZ'$  et  $V_{zz} // OZ$  donc les vecteurs notés  $\{|E_N; I, m_I\rangle \quad -I \leq m_I \leq I\}$  sont des vecteurs propres des opérateurs  $H_N, H_{DM}, I^2, I_{z'}$  mais ces vecteurs ne sont plus des vecteurs propres de l'opérateur  $I_z$ , donc non plus de  $H_Q$ . L'angle  $\alpha$  est l'angle entre l'axe  $OZ'$  et l'axe  $OZ$ . L'expression

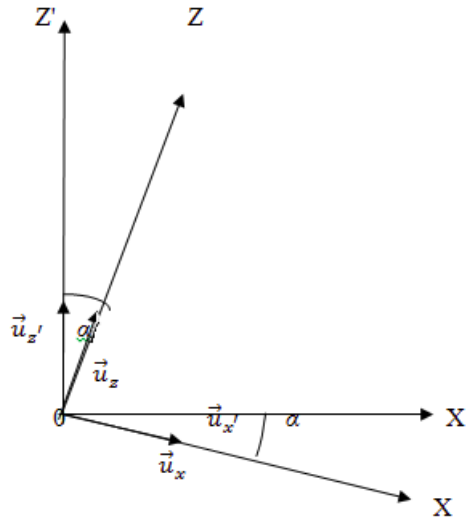


Figure 2.7: Les deux systèmes de coordonnées  $OXYZ$  et  $OX'Y'Z'$ .

(2.59) contient les opérateurs  $I_{z'}$  et  $I_z$ . Exprimons  $I_z$  en termes des composantes  $I_{z'}$  et  $I_{x'}$ . L'opérateur moment cinétique total  $\vec{I}$  peut être exprimé dans les deux systèmes de référence. Nous avons alors:

$$\vec{I} = I_x \vec{u}_x + I_y \vec{u}_y + I_z \vec{u}_z \text{ et également } \vec{I} = I_{x'} \vec{u}_{x'} + I_{y'} \vec{u}_{y'} + I_{z'} \vec{u}_{z'} \quad (2.60)$$

Les six vecteurs  $\vec{u}_x, \vec{u}_{x'}, \vec{u}_y, \vec{u}_{y'}, \vec{u}_z$  et  $\vec{u}_{z'}$  sont évidemment des vecteurs unité suivant les six axes  $OX, OX', OY, OY', OZ$  et  $OZ'$ .

Dans la figure 2.7 nous avons montré seulement les axes  $OX, OZ, OX', OZ'$ .

Nous avons la relation suivante:

$$I_z = \vec{I} \cdot \vec{u}_z \quad (2.61)$$

Il y a une relation entre  $\vec{u}_z$  et  $\vec{u}_{x'}$  et  $\vec{u}_{z'}$ , qui est donnée par l'expression suivante (voir géométrie de la figure 2.7:

$$\vec{u}_z = \cos\alpha \vec{u}_{z'} + \sin\alpha \vec{u}_{x'} \quad (2.62)$$

La substitution de l'expression (2.62) dans l'expression (2.61) nous donne:  
 $I_z = \vec{I} \cdot (\cos\alpha \vec{u}_{z'} + \sin\alpha \vec{u}_{x'})$ , soit:

$$I_z = \cos\alpha I_{z'} + \sin\alpha I_{x'} \quad (2.63)$$

Si cette expression est substituée dans l'expression (2.59), le hamiltonien total est maintenant:

$$H = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3(\cos\alpha I_{z'} + \sin\alpha I_{x'})^2 - I^2 \right] \quad (2.64)$$

En développant le carré à l'intérieur des [ ], nous avons finalement l'expression suivante:

$$H = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_{z'}^2 + 3\sin^2\alpha I_{x'}^2 + 3(I_{z'} I_{x'} + I_{x'} I_{z'}) \sin\alpha \cos\alpha - I^2 \right] \quad (2.65)$$

où le troisième terme du membre de droite de cette expression représente l'interaction quadripolaire électrique  $H_Q$ .

Il est clair maintenant que le commutateur de  $H$  et  $H_Q$  n'est pas nul, ceci dû à la présence de  $I_{x'}$ :

$$[H, H_Q] \neq 0 \quad (2.66)$$

Les expressions (2.65) et (2.66) signifient que les vecteurs propres de  $H_{DM}$ ,  $\{|E_N; I, m_I\rangle \quad -I \leq m_I \leq I\}$ , ne sont pas tous des vecteurs propres de  $H$ .

### Solution approchée par la méthode de perturbation

L'équation aux valeurs propres du hamiltonien total  $H$ , l'expression (2.65), n'a pas de solution analytique. On doit alors faire recours aux méthodes des perturbations stationnaires pour trouver des solutions approchées.

Nous écrivons donc l'expression (2.65) sous la forme:

$$H = H_0 + W \quad (2.67)$$

avec:

$$H_0 = H_N - \gamma B I_{z'} \quad (2.68)$$

et

$$W = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_{z'}^2 + 3\sin^2\alpha I_{x'}^2 + 3(I_{z'} I_{x'} + I_{x'} I_{z'}) \sin\alpha \cos\alpha - I^2 \right]. \quad (2.69)$$

$H_0$  est le hamiltonien non-perturbé,  $W$  est la perturbation.

Les  $2I + 1$  vecteurs  $\{|E_N; I, m_I\rangle \quad -I \leq m_I \leq I\}$  sont des vecteurs propres de  $H_0$  associés aux énergies non-perturbées,  $E_{m_I}^0$ , données par l'expression suivante:

$$E_{m_I}^0 = E_N - g\mu_N B m_I. \quad (2.70)$$

Ces énergies ne sont pas dégénérées car pour chaque valeur de  $m_I$  on a une énergie différente.

Alors la théorie des perturbations stationnaires nous apprend que l'approximation d'ordre un des énergies est donnée par l'expression suivante:

$$E_{m_I} = E_{m_I}^0 + \langle E_N, I, m_I | W | E_N, I, m_I \rangle. \quad (2.71)$$

En détaillant le second terme du membre de droite de (2.71), nous aboutissons à:

$$E_{m_I} = E_N - g\mu_N B m_I + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} \left( \frac{3 \cos^2 \alpha - 1}{2} \right) [3m_I^2 - I(I+1)]. \quad (2.72)$$

L'expression (2.72) donne les énergies du noyau, caractérisé par un moment cinétique  $I$ , soumis aux deux interactions hyperfines: dipolaire magnétique et quadripolaire électrique où l'interaction magnétique est beaucoup plus grande que l'interaction quadripolaire électrique avec  $\vec{B} // OZ'$ ,  $\eta = 0$  et  $V_{zz} // OZ$ . L'angle entre l'axe  $OZ'$  et l'axe  $OZ$  est  $\alpha$ .

L'expression (2.72) a été obtenue en appliquant la théorie des perturbations stationnaires au premier ordre. Le spectre d'énergies ressemble complètement au spectre de la figure 2.6, avec des valeurs de  $\Delta'$  et  $\Delta''$  qui peuvent être calculées facilement en utilisant la formule (2.58).

Pour un spin nucléaire caractérisé par  $I = \frac{3}{2}$ , nous trouvons:

$$\Delta' = \Delta + \frac{e^2 q Q}{2} \left( \frac{3 \cos^2 \alpha - 1}{2} \right) \quad \text{et} \quad \Delta'' = \Delta - \frac{e^2 q Q}{2} \left( \frac{3 \cos^2 \alpha - 1}{2} \right). \quad (2.73)$$

Il est intéressant de comparer l'expression (2.72) avec l'expression (2.57) où la différence est due au facteur angulaire  $\left( \frac{3 \cos^2 \alpha - 1}{2} \right)$ . Si  $\alpha = 0$ , les deux expressions sont identiques.

## Chapitre 3

# SPECTRE MOSSBAUER POUR UNE SOURCE NON MAGNETIQUE: LE $^{57}\text{Fe}$ INCORPORE DANS LE RHODIUM ( $^{57}\text{CoRh}$ )

### 3.1 Introduction: spectre Mössbauer

Les spectres Mössbauer sont des résonances, chacune d'elles ayant la forme d'une courbe lorentzienne, qui est caractérisée par la position qui dépend des interactions (déplacement isomérique, interaction quadripolaire électrique ou dipolaire magnétique), une largeur (due à la largeur naturelle des états excités) et une intensité relative.

L'intensité spectrale dépend de la probabilité de transition (transitions permises ou non aboutissant aux règles de sélection), de la population du niveau et de la concentration ou du chemin optique via la loi de Beer-Lambert. Cette dernière étant exprimée par [Greenwood and Gibb, 1971], [Janot, 1972]:

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-dn\sigma(E)) \quad (3.1)$$

Ce rapport représente la proportion de rayonnement transmise au détecteur où  $d$  est l'épaisseur de l'absorbeur,  $n$  la concentration de l'échantillon et  $\sigma(E)$  le coefficient d'absorption qui est relié à la section efficace  $\sigma_R(E)$  par la relation [Greenwood and Gibb, 1971]:

$$\sigma(E) = \bar{\sigma} + \sigma_R(E) \quad (3.2)$$

où  $\bar{\sigma}$  est le coefficient d'extinction c'est-à-dire la mesure de la modification du rayonnement par absorption et diffusion dans un milieu.

La section efficace d'absorption est donnée par la relation [Janot, 1972]:

$$\sigma_R(E) = \beta f_a \sigma_0 \frac{1}{(E - E_0^a)^2 + \frac{\Gamma_a^2}{4}} \quad (3.3)$$

$\Gamma_a$  est la largeur naturelle due à la source et  $E_0^a$  énergie de transition nucléaire.  $f_a$  est la fraction résonnante sans recul,  $\beta$  la proportion réelle d'atomes affectés par la transition nucléaire et  $\sigma_0$ , coefficient de proportionnalité, tient compte de l'étendue quantique, de l'angle solide du détecteur, du nombre  $((2I_e + 1)/(2I_f + 1))$ , du facteur de dimension pour l'onde incident et du facteur de conversion interne et est donné par [Greenwood and Gibb, 1971], [Janot, 1972]:

$$\sigma_0 = \frac{\lambda^2}{2\pi} \frac{1}{1 + \alpha} \frac{2I_e + 1}{2I_f + 1} \quad (3.4)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $I_e$  et  $I_f$  définis dans les sections antérieures.

Dans l'approximation des absorbeurs minces (section efficace mince), l'intensité transmise des photons  $\gamma$  émis par la source après leur passage à travers l'absorbeur, en fonction de la vitesse  $v$  de la source pour le cas d'une seule résonance, est alors décrite par l'expression suivante [Greenwood and Gibb, 1971],[Janot, 1972]:

$$I(v) = \frac{n\beta df_s f_a \sigma_0}{2} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \left(\frac{E_0 v}{c}\right)^2} \quad (3.5)$$

Cette expression se généralise, dans le cas où les environnements ne sont pas les mêmes dans la source et dans l'absorbeur, comme [Greenwood and Gibb, 1971], [Janot, 1972]:

$$\begin{aligned} I(v) &= \frac{n\beta df_s f_a \sigma_0}{2} \frac{c^2 \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{E_0^2 \left[ \left(v - \frac{c}{E_0} \delta_j\right)^2 + \frac{c^2 \Gamma^2}{4E_0^2} \right]} = \frac{n\beta df_s f_a \sigma_0}{2} \frac{\frac{\gamma^2}{4}}{\left[ \left(v - \frac{c}{E_0} \delta_j\right)^2 + \frac{\gamma^2}{4} \right]} \\ &= \frac{n\beta df_s f_a \sigma_0}{2} \frac{\frac{\gamma^2}{4}}{\left[ (v - v_{\delta_j})^2 + \frac{\gamma^2}{4} \right]} \end{aligned} \quad (3.6)$$

où  $\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_s$ ,  $\gamma = \frac{c}{E_0} (\Gamma_a + \Gamma_s)$  et le pic (ou résonance) du spectre n'est plus à  $v = 0$  mais déplacé à  $v = \frac{c}{E_0} \delta_j = v_{\delta_j}$ .  $f_s$  est tel que la fraction  $(1 - f_s)$  du rayonnement émis par la source avec recul des noyaux et, qui par conséquent subira seulement une extinction dans l'absorbeur sans participer à la résonance.

## 3.2 Absence d'interactions dans la source et dans l'absorbeur

Lorsque le noyau est soumis aux interactions dipolaire magnétique et quadripolaire électrique, le hamiltonien total, pour  $\vec{B} // OZ'$  (avec symétrie axiale) est de la forme:

$$H = H_N + H_{DM} + H_Q = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2) \quad (3.7)$$

S'il n'y a aucune interaction cette expression devient:

$$H = H_N$$

La seule interaction qui reste est celle liée au déplacement isomérique qui se traduit, selon la géométrie de la figure 3.1, par:

$$\begin{aligned} E_0 + \frac{v_D}{c} E_0 &= E_0 + \delta, \\ \delta &= \frac{v_D E_0}{c} \text{ ou } v_D = \frac{c}{E_0} \delta \end{aligned} \quad (3.8)$$

où  $c$ ,  $E_0$  sont la vitesse et l'énergie du rayonnement,  $\delta$  définis précédemment

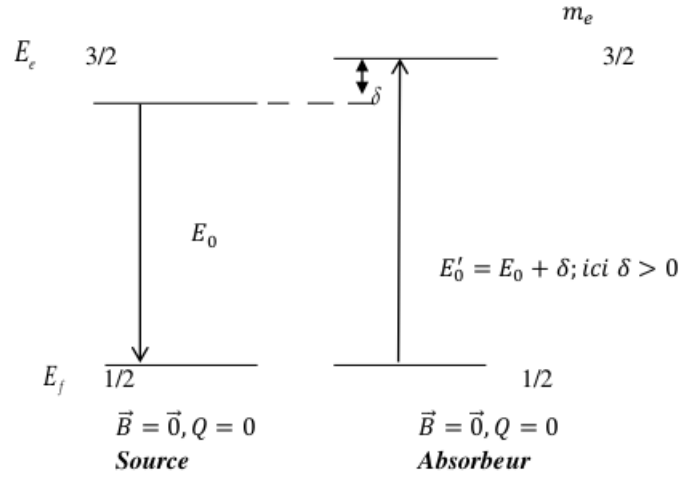


Figure 3.1: Energie d'une source et un absorbeur non magnétiques ( $^{57}\text{Fe}$ )

A la résonance, l'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression (3.6) qui est reprise ici:

$$I(v) = \frac{n\beta df_s f_a \sigma_0}{2} \frac{\frac{\gamma^2}{4}}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + \frac{\gamma^2}{4} \right]} = 0,723 \times \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]}, \quad (3.9)$$

Les deux constantes dans la relation (3.9) ont été calculées en remplaçant  $n, \beta, d, f_s, f_a, \sigma_0$  par leurs valeurs trouvées dans la littérature [Janot, 1972].  $\frac{c}{E_0}\delta_j = v_j$ . Si  $\delta = 0$ , la résonance se produit à  $v = 0$  (spectre en  $v = 0$ ).

### 3.3 Présence d'un champ magnétique seul dans l'absorbeur

Le hamiltonien est de la forme:

$$H = H_N + H_{DM} = H_N - \gamma B I_z, \quad (3.10)$$

et les valeurs propres correspondantes sont données par (2.52):

$$E_{m_I} = E = E_N + E_{DM} = E_N - g\mu_N B \hbar m_I, \quad (3.11)$$

où

$$E_{DM} = -g\mu_N B m_I \quad (3.12)$$

représente les valeurs propres de  $H_{DM}$ .

La figure 3.2 illustre cette interaction pour la transition Mössbauer du  $^{57}\text{Fe}$ .

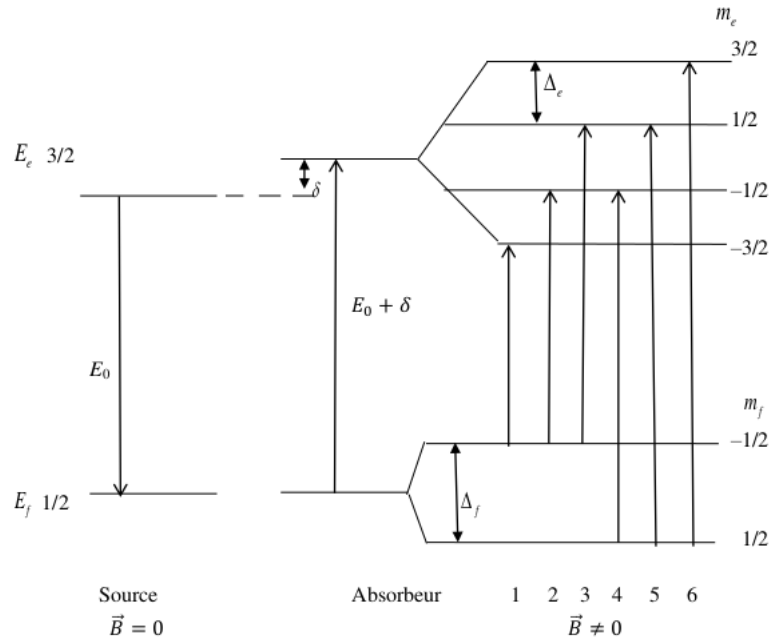


Figure 3.2: Energie d'une source non magnétique et un absorbeur magnétique ( $^{57}\text{Fe}$ ),  $\delta$  est le déplacement isomérique de la source par rapport à l'absorbeur.

Les résonances correspondant aux six transitions s'obtiennent respectivement:

pour la transition 1:

❖ énergie du photon;  $E_1 = E_0$ ;

❖ énergie nécessaire pour l'absorption:  $E'_0 = E_0 - \frac{3}{2}\Delta_e - \frac{1}{2}\Delta_f + \delta$ ;

❖ condition de résonance:

$$E'_1 = E_0 + \frac{v_1}{c}E_0 = E_0 - \frac{3}{2}\Delta_e - \frac{1}{2}\Delta_f + \delta; \text{ soit:}$$

$$v_1 = \frac{c}{E_0} \left( -\frac{3}{2}\Delta_e - \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right). \quad (3.13)$$

De façon analogue nous trouvons

$$v_2 = \frac{c}{E_0} \left( -\frac{1}{2}\Delta_e - \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right); \quad (3.14)$$

$$v_3 = \frac{c}{E_0} \left( \frac{1}{2}\Delta_e - \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right); \quad (3.15)$$

$$v_4 = \frac{c}{E_0} \left( -\frac{1}{2}\Delta_e + \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right); \quad (3.16)$$

$$v_5 = \frac{c}{E_0} \left( -\frac{1}{2}\Delta_e + \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right); \quad (3.17)$$

$$v_6 = \frac{c}{E_0} \left( \frac{3}{2}\Delta_e + \frac{1}{2}\Delta_f + \delta \right) \quad (3.18)$$

les vitesses de résonances correspondant respectivement aux transitions 2, 3, 4, 5 et 6.

Constatons que:  $\delta > 0$ ,  $v_1 < 0$ ,  $v_6 > 0$ ,  $v_2 < 0$ ,  $v_3 < 0$ ,  $v_4 > 0$ ,  $v_5 > 0$ .

Les vitesses des résonances des transitions 1 et 6, 2 et 5, 3 et 4 sont situées de façon symétrique par rapport à  $v_\delta$ .

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression:

$$I(v) = 0,723 \times \left[ \sum_{i=1}^6 \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0}\delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]} \right] \quad (3.19)$$

où  $\frac{c}{E_0}\delta_j = v_{\delta_j}$ ,  $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$  représentent respectivement les vitesses de résonance des six transitions Mössbauer.

Le spectre Mössbauer consiste ici en six résonances et il est symétrique par rapport à  $v_\delta$ , la vitesse correspondant au déplacement isomérique de la source par rapport à l'absorbeur.

Le spectre Mössbauer inclut évidemment la largeur naturelle due à la source et l'absorbeur. Idéalement, la largeur d'un spectre Mössbauer est égale à deux fois la largeur naturelle.

## 3.4 Présence d'une interaction quadripolaire dans l'absorbeur

Le hamiltonien total est donné par (2.21) repris ici:

$$H = H_N + H_Q \quad (3.20)$$

où  $H_Q$  est donnée par l'expression:

$$H_Q = \frac{eQ}{6\hbar^2 I(2I-1)} \sum_{\alpha, \beta=x, y, z} V_{\alpha\beta} \left[ \frac{3}{2} (I_\alpha I_\beta + I_\beta I_\alpha) - \delta_{\alpha\beta} I^2 \right] \quad (3.21)$$

Dans le cas des noyaux de spin  $I > \frac{1}{2}$  le hamiltonien quadripolaire s'exprime par l'expression:

$$\begin{aligned} H_Q &= \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I(2I-1)} [3I_z^2 - I^2 + \eta(I_x^2 - I_y^2)] \\ &= \frac{V_{zz} e Q}{4\hbar^2 I(2I-1)} [3I_z^2 - I^2 + \eta(I_x^2 - I_y^2)] \end{aligned} \quad (3.22)$$

où  $V_{zz} = eq$  et  $\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}$  sont respectivement le gradient de champ et le paramètre d'assymétrie.

### 3.4.1 Gradient de champ axial ( $\eta = 0$ )

Le hamiltonien quadripolaire devient (2.27):

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I(2I-1)} [3I_z^2 - I^2] \quad (3.23)$$

et l'énergie totale est donc donnée par:

$$E_{|m_I|} = E = E_N + E_Q = E_N + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)]. \quad (3.24)$$

En fonction de  $V_{zz} = eq$ , l'éclatement quadripolaire du premier état excité du  $^{57}\text{Fe}$  est donc:

$$\Delta E_Q = E_{|\pm\frac{3}{2}|} - E_{|\pm\frac{1}{2}|} = \frac{e^2 q Q}{2} = \frac{V_{zz} e Q}{2} \quad (3.25)$$

En posant  $V_{zz} = 1,614 \text{ V/m}^2$  et  $Q = 0,17 \text{ b}$ , nous aurons:

$$\Delta E_Q = \frac{e^2 q Q}{2} = \frac{V_{zz} e Q}{2} = \frac{1,614 \times 10^{19} \times 1,602 \times 10^{-19} \times 0,17}{2} \text{ Vm}^{-2} \text{Cb} = 0,219504 \text{ Vm}^{-2}. \quad (3.26)$$

Les conditions de résonance s'obtiennent comme suit:

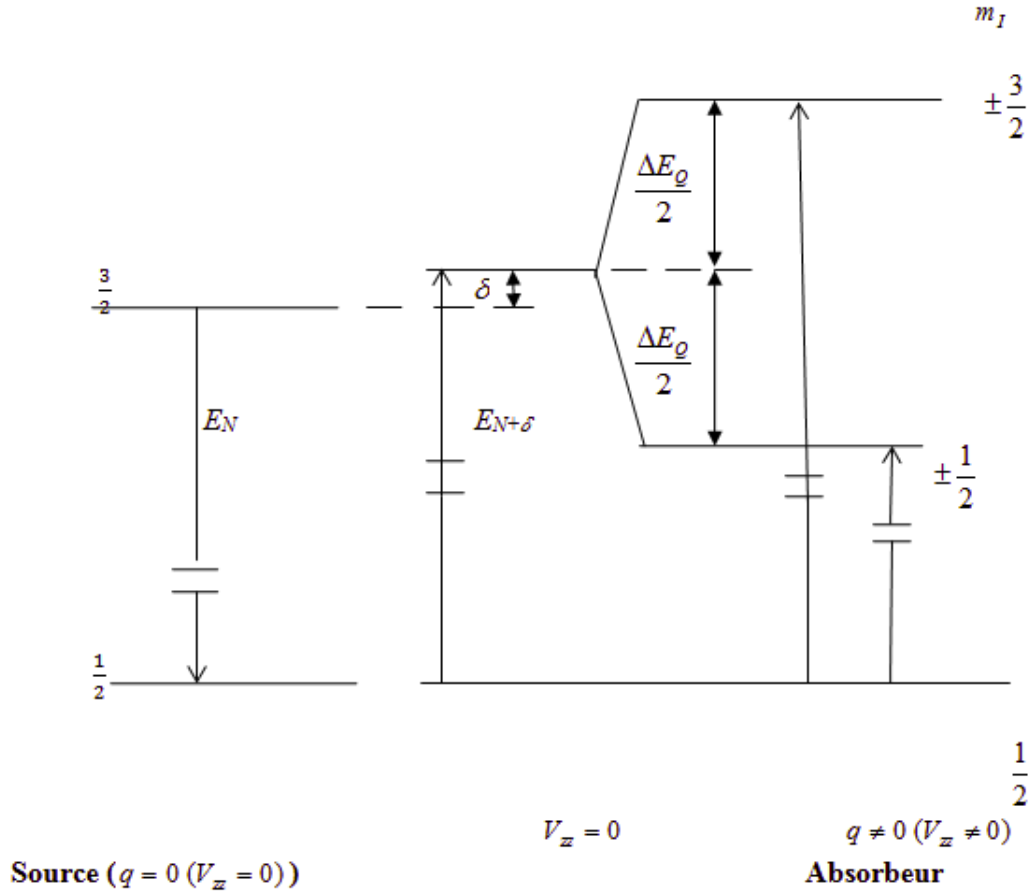


Figure 3.3: Niveau d'énergie du  $^{57}\text{Fe}$ : absorbeur (avec interaction quadripolaire) et la source sans interaction électrique, symétrie axiale.

$$E_N + \frac{v_1}{c} E_N = E_N + \delta + \frac{\Delta E_Q}{2} \text{ ou } v_1 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{\Delta E_Q}{2} + \delta \right) = \frac{c}{E_N} \left( \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right) \quad (3.27)$$

De même

$$v_2 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{\Delta E_Q}{2} + \delta \right) = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right) \quad (3.28)$$

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression:

$$I(v) = 0,723 \times \sum_{j=1}^2 \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]} \quad (3.29)$$

où  $\frac{c}{E_0} \delta_j = v_j$ ,  $j = 1, 2$  représentent respectivement les vitesses de résonance des deux transitions Mössbauer.

Les deux vitesses sont situées de façon symétrique par rapport  $v_\delta$ .

Le spectre Mössbauer consiste alors ici en deux résonances situées de part et d'autre de la valeur du déplacement isomérique  $\delta$ , exprimée en unités de vitesse de la source

évidemment, c'est-à-dire  $v_\delta$ .

### 3.4.2 Gradient de champ non axial ( $\eta \neq 0$ )

Le hamiltonien quadripolaire électrique  $H_Q$  (pour  $\eta \neq 0$ ) est donné par l'expression:

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \eta(I_x^2 - I_y^2) \right]; I > \frac{1}{2}. \quad (3.30)$$

qui devient

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right], I > \frac{1}{2}. \quad (3.31)$$

$H_Q$  est représenté par une matrice dont les éléments sont respectivement:

$$\begin{aligned} H_{Q11} &= \langle 1 | H_Q | 1 \rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -3/2 \right\rangle \\ &= \frac{e^2 q Q}{4} \\ &= \frac{V_{zz} e Q}{4}; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_{Q12} &= \langle 1 | H_Q | 2 \rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -1/2 \right\rangle \\ &= 0; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_{Q13} &= \langle 1 | H_Q | 3 \rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 1/2 \right\rangle \\ &= \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} \\ &= \frac{\sqrt{3} V_{zz} e Q \eta}{12}; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_{Q14} &= \langle 1 | H_Q | 4 \rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 3/2 \right\rangle \\ &= 0; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q21} &= \langle 2 | H_Q | 1 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = -1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -3/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q22} &= \langle 2 | H_Q | 2 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = -1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -1/2 \right\rangle \\
 &= -\frac{e^2 q Q}{4} \\
 &= -\frac{V_{zz} e Q}{4};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q23} &= \langle 2 | H_Q | 3 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = -1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 1/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q24} &= \langle 2 | H_Q | 4 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = -1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 3/2 \right\rangle \\
 &= \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} \\
 &= \frac{\sqrt{3} V_{zz} e Q \eta}{12};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q31} &= \langle 3 | H_Q | 1 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -3/2 \right\rangle \\
 &= \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} \\
 &= \frac{\sqrt{3} V_{zz} e Q \eta}{12};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q32} &= \langle 3 | H_Q | 2 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -1/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q33} &= \langle 3 | H_Q | 3 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 1/2 \right\rangle \\
 &= -\frac{e^2 q Q}{4} \\
 &= -\frac{V_{zz} e Q}{4};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q34} &= \langle 3 | H_Q | 4 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 3/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{41} &= \langle 4 | H_Q | 1 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -3/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q42} &= \langle 4 | H_Q | 2 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = -1/2 \right\rangle \\
 &= \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} \\
 &= \frac{\sqrt{3} V_{zz} e Q \eta}{12};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q43} &= \langle 4 | H_Q | 3 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2}(I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 1/2 \right\rangle \\
 &= 0;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_{Q44} &= \langle 4 | H_Q | 4 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4 \hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3I_z^2 - I^2 + \frac{\eta}{2} (I_+^2 + I_-^2) \right] \right| E_N, I, m_I = 3/2 \right\rangle \\
 &= \frac{e^2 q Q}{4} \\
 &= \frac{V_{zz} e Q}{4}.
 \end{aligned}$$

La matrice  $H_Q$  est donc:

$$H_Q = \begin{pmatrix} \frac{e^2 q Q}{4} & 0 & \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} & 0 \\ 0 & -\frac{e^2 q Q}{4} & 0 & \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} \\ \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} & 0 & -\frac{e^2 q Q}{4} & 0 \\ 0 & \frac{\sqrt{3} e^2 q Q \eta}{12} & 0 & \frac{e^2 q Q}{4} \end{pmatrix} = \left( \frac{e^2 q Q}{4} \right)^2 \begin{pmatrix} 1 & 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 \\ 0 & -1 & 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} \\ \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 & -1 & 0 \\ 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.32)$$

Les valeurs propres de  $H_Q$  (et donc les énergies des sous-niveaux) sont donc déterminées à l'aide de l'équation caractéristique de la manière suivante:

$$\begin{vmatrix} H_{Q11} - \lambda & H_{Q12} & H_{Q13} & H_{Q14} \\ H_{Q21} & H_{Q22} - \lambda & H_{Q23} & H_{Q24} \\ H_{Q31} & H_{Q32} & H_{Q33} - \lambda & H_{Q34} \\ H_{Q41} & H_{Q42} & H_{Q43} & H_{Q44} - \lambda \end{vmatrix} = 0, \quad (3.33)$$

soit

$$\left( \frac{e^2 q Q}{4} \right)^2 \begin{vmatrix} 1 - \lambda & 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 \\ 0 & -1 - \lambda & 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} \\ \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 & -1 - \lambda & 0 \\ 0 & \frac{\sqrt{3} \eta}{3} & 0 & 1 - \lambda \end{vmatrix} = 0.$$

Nous aboutissons à l'équation, en laissant de côté le facteur de gauche:

$$\left[ (1 - \lambda)(1 + \lambda) + \frac{\eta^2}{3} \right]^2 = 0$$

dont la solution est:

$$\lambda_{1,2} = \pm \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}}$$

Les valeurs propres sont donc:

$$E_{Q(\pm\frac{1}{2})} = -\frac{e^2 q Q}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} = -\frac{V_{zz} e Q}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} \quad (3.34)$$

$$E_{Q(\pm\frac{3}{2})} = \frac{e^2 q Q}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} = \frac{V_{zz} e Q}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} \quad (3.35)$$

Ce qui s'écrit généralement par (2.43).

La différence énergétique entre les deux sous-niveaux adjacents vaut donc:

$$E_{Q(\pm\frac{3}{2})} - E_{Q(\pm\frac{1}{2})} = \frac{e^2qQ}{2} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} = \frac{V_{zz}eQ}{2} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} = \frac{\Delta E_Q}{2} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} \quad (3.36)$$

Le schéma des niveaux hyperfins du  $^{57}\text{Fe}$  soumis à l'interaction quadripolaire, avec symétrie non axiale, est présenté dans la figure 3.4. Les conditions de résonance s'obtiennent à des

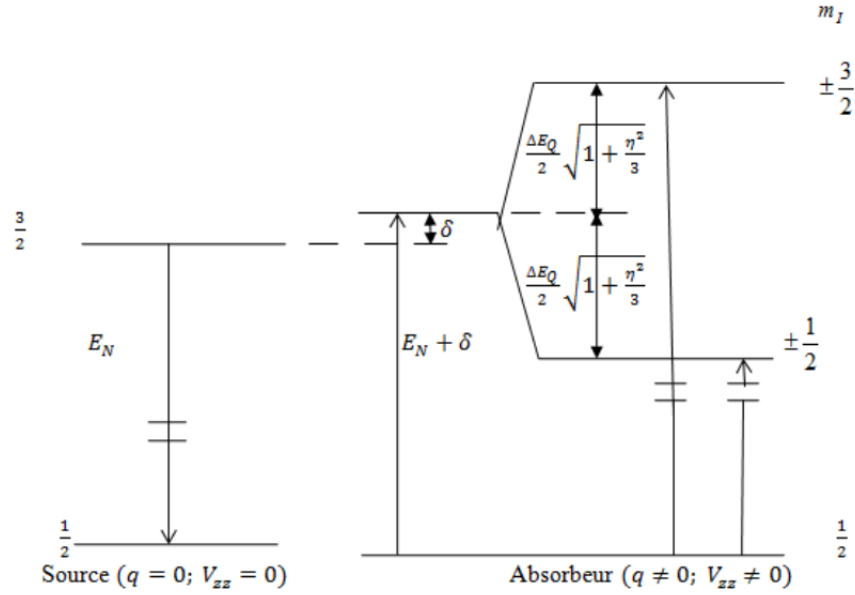


Figure 3.4: Niveau d'énergie du  $^{57}\text{Fe}$ : absorbeur (avec interaction quadripolaire électrique) et la source sans aucune interaction, symétrie non axiale.

vitesse:

$$v_1 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{e^2qQ}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} + \delta \right) = \frac{c}{E_N} \left( \frac{V_{zz}eQ}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} + \delta \right) \quad (3.37)$$

$$v_2 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{e^2qQ}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} + \delta \right) = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{V_{zz}eQ}{4} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} + \delta \right). \quad (3.38)$$

La différence entre les deux vitesses de résonance s'exprime par la relation:

$$v_1 - v_2 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{e^2qQ}{2} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} \right) = \frac{c}{E_N} \left( \frac{V_{zz}eQ}{2} \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}} \right). \quad (3.39)$$

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression:

$$I(v) = 0,723 \times \sum_{j=1}^2 \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]} \quad (3.40)$$

où  $\frac{c}{E_0}\delta_j = v_j$ ,  $j = 1, 2$  représentent respectivement les vitesses de résonance des deux transitions Mössbauer.

Les deux vitesses sont situées de façon symétrique par rapport  $v_\delta$ .

Le spectre Mössbauer consiste alors ici en deux résonances situées de part et d'autre de la valeur du déplacement isomérique  $\delta$ , exprimée en unités de vitesse de la source évidemment.

### 3.5 Présence des interactions simultanées: interaction quadripolaire électrique combinée à une interaction dipolaire magnétique

L'expression générale pour le hamiltonien total, avec  $\vec{B} \parallel OZ'$  est donnée par l'expression suivante:

$$H = H_N + H_{DM} + H_Q = H_N - \gamma BI_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left( 3I_z^2 - I^2 + \eta (I_x^2 - I_y^2) \right) \quad (3.41)$$

#### 3.5.1 Symétrie axiale ( $\eta = 0$ ), $\vec{B} \parallel OZ'$ et $V_{zz} \parallel OZ$

En présence simultanée d'interactions quadripolaire électrique et dipolaire magnétique, le hamiltonien total,  $H$ , d'un noyau ayant un moment cinétique total caractérisé par  $I$ , dans le cas où  $\vec{B} \parallel OZ'$ , symétrie axiale ( $\eta = 0$ ) et  $V_{zz} \parallel OZ$ , est maintenant donné par l'expression suivante:

$$H = H_N + H_{DM} + H_Q = H_N - \gamma BI_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left( 3I_z^2 - I^2 \right) \quad (3.42)$$

où  $H_N$ ,  $H_{DM}$  et  $H_Q$  sont données par les expressions (2.55) et (2.56) reprises ici

$$H_Q = \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left( 3I_z^2 - I^2 \right) \quad (3.43)$$

$$H_{DM} = -\gamma BI_{z'} = -\frac{g\mu_N}{\hbar} BI_{z'} \quad (3.44)$$

### 3.5.2 Champ magnétique parallèle au gradient de champ $V_{zz}$ :

$$\vec{B} // V_{zz} // OZ' // OZ \text{ avec } \eta = 0$$

Les valeurs propres du hamiltonien sont de la forme:

$$\begin{aligned} E_{m_I} &= E_N - g\mu_N B m_I + \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \\ &= E_N - g\mu_N B m_I + \frac{V_{zz} e Q}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)]. \end{aligned} \quad (3.45)$$

Pour  $^{57}\text{Fe}$ , nous avons:

❖ premier état excité:  $I = \frac{3}{2}$ ;  $m_I = \pm\frac{1}{2}, \pm\frac{3}{2}$ ,

$$\begin{aligned} E_{\pm\frac{3}{2}} &= E_N \mp \frac{3}{2} g_e \mu_N B + \frac{e^2 q Q}{4} = E_N \mp \frac{3}{2} g_e \mu_N B + \frac{V_{zz} e Q}{4}; \\ E_{\pm\frac{1}{2}} &= E_N \mp \frac{1}{2} g_e \mu_N B - \frac{e^2 q Q}{4} = E_N \mp \frac{1}{2} g_e \mu_N B - \frac{V_{zz} e Q}{4} \end{aligned} \quad (3.46)$$

❖ état fondamental:  $I = \frac{1}{2}$ ;  $m_I = \pm\frac{1}{2}$ ;

$$E_{\pm\frac{1}{2}} = E_N \mp \frac{1}{2} g_f \mu_N B - \frac{e^2 q Q}{4} = E_N \mp \frac{1}{2} g_f \mu_N B - \frac{V_{zz} e Q}{4} \quad (3.47)$$

Les différences énergétiques entre les sous-niveaux se calculent de la manière suivante (figure 3.5):

$$\Delta' = E_{\frac{3}{2}} - E_{\frac{1}{2}} = -g_e \mu_N B + \frac{e^2 q Q}{4} = g_e \mu_N B + \frac{V_{zz} e Q}{2} = \Delta + \frac{V_{zz} e Q}{2} \quad (3.48)$$

$$E_{\frac{1}{2}} - E_{-\frac{1}{2}} = -g_e \mu_N B = \Delta, \quad (3.49)$$

$$\Delta'' = E_{-\frac{1}{2}} - E_{-\frac{3}{2}} = -g_e \mu_N B - \frac{e^2 q Q}{2} = \Delta_e - \frac{V_{zz} e Q}{2} \quad (3.50)$$

où  $\Delta = |g_e \mu_N B|$ . Tout cela est illustré dans la figure 3.5; où la source ne subit aucune interaction, l'absorbeur soumis aux interactions combinées dipolaire magnétique et quadripolaire électrique avec  $\delta Q > 0$ ,  $\Delta' = \Delta - \frac{V_{zz} e Q}{2}$ ,  $\Delta'' = \Delta_e - \frac{V_{zz} e Q}{2}$ ;  $\eta = 0$ ;  $\vec{B} \parallel V_{zz}$ ;  $\delta > 0$ .

Selon la géométrie de la figure, les conditions de résonance pour les six transitions de l'absorbeur s'obtiennent respectivement à des vitesses suivantes:

$$v_1 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (3\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right); \quad (3.51)$$

$$v_2 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (\Delta_e + \Delta_f) - \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right); \quad (3.52)$$

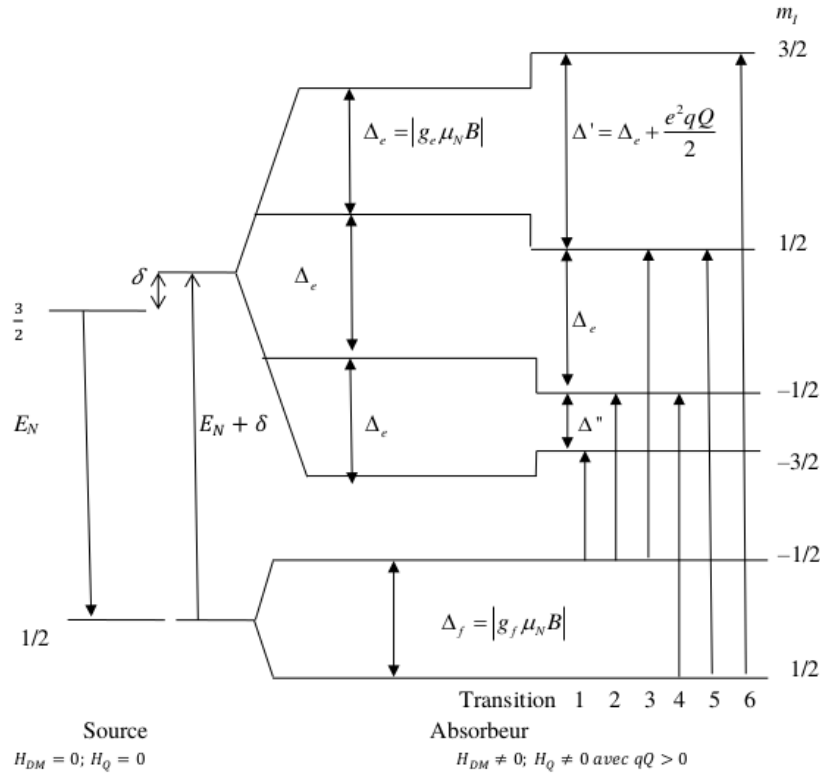


Figure 3.5: Transitions Mössbauer de  $^{57}\text{Fe}$  dont l'absorbeur est soumis aux interactions combinées.

$$v_3 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{1}{2} (\Delta_e - \Delta_f) + \frac{V_{zz} e q}{4} + \delta \right); \quad (3.53)$$

$$v_4 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (\Delta_e - \Delta_f) - \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right); \quad (3.54)$$

$$v_5 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{1}{2} (\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right); \quad (3.55)$$

$$v_6 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{1}{2} (3\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz} e Q}{4} + \delta \right). \quad (3.56)$$

Remarquons que  $v_1$  et  $v_6$ ,  $v_2$  et  $v_5$ ,  $v_3$  et  $v_4$  ne sont plus symétriques par rapport à  $v_\delta$ .

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression:

$$I(v) = 0,723 \times \sum_{j=1}^6 \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]} \quad (3.57)$$

où  $\frac{c}{E_0} \delta_j = v_j$ ,  $j = 1, 2, 3, 4, 5$  et  $6$  représentent respectivement les vitesses de résonance des six transitions Mössbauer considérées ici.

### 3.5.3 Champ magnétique $\vec{B}$ non parallèle au gradient de champ

$$V_{zz} \left( (OZ' \nparallel OZ (\vec{B} \nparallel V_{zz'})) \right)$$

Le hamiltonien est donné par ( $\vec{B} \nparallel OZ', OZ' \nparallel OZ, (\eta = 0)$ ) l'équation (2.59):

$$H = H_N - \gamma B I_{z'} + \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} (3I_z^2 - I^2)$$

Dans le cas du  $^{57}\text{Fe}$  l'interaction quadripolaire électrique est petite par rapport à l'interaction dipolaire magnétique. En utilisant la méthode des perturbations introduites au chapitre II, nous avons:

$$H = H_0 + W$$

avec :

$$H_0 = H_N - \gamma B I_{z'}$$

où la perturbation  $W$  est donnée par (2.69) et l'énergie totale par (2.72).

Explicitement, nous avons:

$$E_{m_I} = E_N - g\mu_N B m_I + \frac{V_{zz} e Q}{4I(2I - 1)} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) [3m_I^2 - I(I + 1)] \quad (3.58)$$

Le même résultat peut être trouvé en résolvant l'équation caractéristique où les éléments matriciels sont calculés en adoptant les notations de la section 2.4.3.1 et où seuls les éléments diagonaux sont non nuls:

$$\begin{aligned} W_{11} &= \langle 1|W|1\rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_z^2 + \frac{3}{4}\sin^2\alpha (I_+^2 + I_-^2 + I_+ I_- + I_- I_+) \right] - \right. \right. \\ &\quad \left. \left. \frac{3}{2} [(I_z(I_+ + I_-) + (I_+ + I_-))] \sin\alpha \cos\alpha - I^2 \right| E_N, I, m_I = -3/2 \right\rangle; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} W_{22} &= \langle 2|W|2\rangle \\ &= \left\langle E_N, I, m_I = -1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_z^2 + \frac{3}{4}\sin^2\alpha (I_+^2 + I_-^2 + I_+ I_- + I_- I_+) \right] - \right. \right. \\ &\quad \left. \left. \frac{3}{2} [(I_z(I_+ + I_-) + (I_+ + I_-))] \sin\alpha \cos\alpha - I^2 \right| E_N, I, m_I = -1/2 \right\rangle; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 W_{33} &= \langle 3|W|3 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 1/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_z^2 + \frac{3}{4}\sin^2\alpha (I_+^2 + I_-^2 + I_+ I_- + I_- I_+) - \right. \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. \left. \frac{3}{2} [(I_z(I_+ + I_-) + (I_+ + I_-)) \sin\alpha \cos\alpha - I^2] \right] \right| E_N, I, m_I = 1/2 \right\rangle;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 W_{44} &= \langle 4|W|4 \rangle \\
 &= \left\langle E_N, I, m_I = 3/2 \left| \frac{e^2 q Q}{4\hbar^2 I (2I - 1)} \left[ 3\cos^2\alpha I_z^2 + \frac{3}{4}\sin^2\alpha (I_+^2 + I_-^2 + I_+ I_- + I_- I_+) - \right. \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. \left. \frac{3}{2} [(I_z(I_+ + I_-) + (I_+ + I_-)) \sin\alpha \cos\alpha - I^2] \right] \right| E_N, I, m_I = 3/2 \right\rangle.
 \end{aligned}$$

Nous trouvons alors les valeurs propres suivantes:

$$\begin{aligned}
 \lambda_1 &= \frac{e^2 q Q}{8} (\cos^2\alpha - 1) = \frac{V_{zz} e Q}{8} (\cos^2\alpha - 1) ; \\
 \lambda_2 &= -\frac{e^2 q Q}{8} (\cos^2\alpha - 1) = -\frac{V_{zz} e Q}{8} (\cos^2\alpha - 1) .
 \end{aligned}$$

En se servant de la relation (3.58), les énergies des sous-niveaux (et donc les valeurs propres du hamiltonien), pour le  $^{57}\text{Fe}$ , sont donc données par:

$$\begin{aligned}
 E_{-\frac{3}{2}} &= E_N + \frac{3}{2} g\mu_N B + \frac{e^2 q Q}{8} (3\cos^2\alpha - 1) ; \\
 E_{\frac{3}{2}} &= E_N - \frac{3}{2} g\mu_N B + \frac{e^2 q Q}{8} (3\cos^2\alpha - 1) ; \\
 E_{-\frac{1}{2}} &= E_N + \frac{1}{2} g\mu_N B - \frac{e^2 q Q}{8} (3\cos^2\alpha - 1) ; \\
 E_{\frac{1}{2}} &= E_N - \frac{1}{2} g\mu_N B - \frac{e^2 q Q}{8} (3\cos^2\alpha - 1) ;
 \end{aligned}$$

Les différences énergétiques entre les sous-niveaux adjacents se calculent de la manière suivante:

$$\begin{aligned}
 E_{\frac{3}{2}} - E_{\frac{1}{2}} &= -g\mu_N B + \frac{e^2 q Q}{4} (3\cos^2\alpha - 1) = \Delta + \frac{\Delta E_Q}{2} (3\cos^2\alpha - 1) \\
 &= \Delta + \frac{V_{zz} e Q}{4} (3\cos^2\alpha - 1) = \Delta';
 \end{aligned} \tag{3.59}$$

$$E_{\frac{1}{2}} - E_{-\frac{1}{2}} = -g\mu_N B = \Delta; \tag{3.60}$$

$$\begin{aligned} E_{-\frac{1}{2}} - E_{-\frac{3}{2}} &= -g\mu_N B - \frac{e^2 q Q}{4} (3\cos^2\alpha - 1) = \Delta - \frac{\Delta E_Q}{2} (3\cos^2\alpha - 1) \\ &= \Delta - \frac{V_{zz} e Q}{4} (3\cos^2\alpha - 1) = \Delta'' \end{aligned} \quad (3.61)$$

où

$$\Delta' = \Delta + \frac{e^2 q Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) = \Delta + \frac{V_{zz} e Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) \quad (3.62)$$

et

$$\Delta'' = \Delta - \frac{e^2 q Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) = \Delta - \frac{V_{zz} e Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) \quad (3.63)$$

Tout cela est illustré dans la figure 3.6; où la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit d'interactions dipolaire magnétique (plus grande) et quadripolaire électrique (plus petite) avec  $qQ > 0$ ;  $\Delta'' = \Delta_e - \frac{e^2 q Q}{2}$ ;  $\eta = 0$ ;  $\vec{B} \parallel V_{zz}$ ;  $\delta \neq 0$ ;  $\alpha \neq 0$ . Les vitesses des

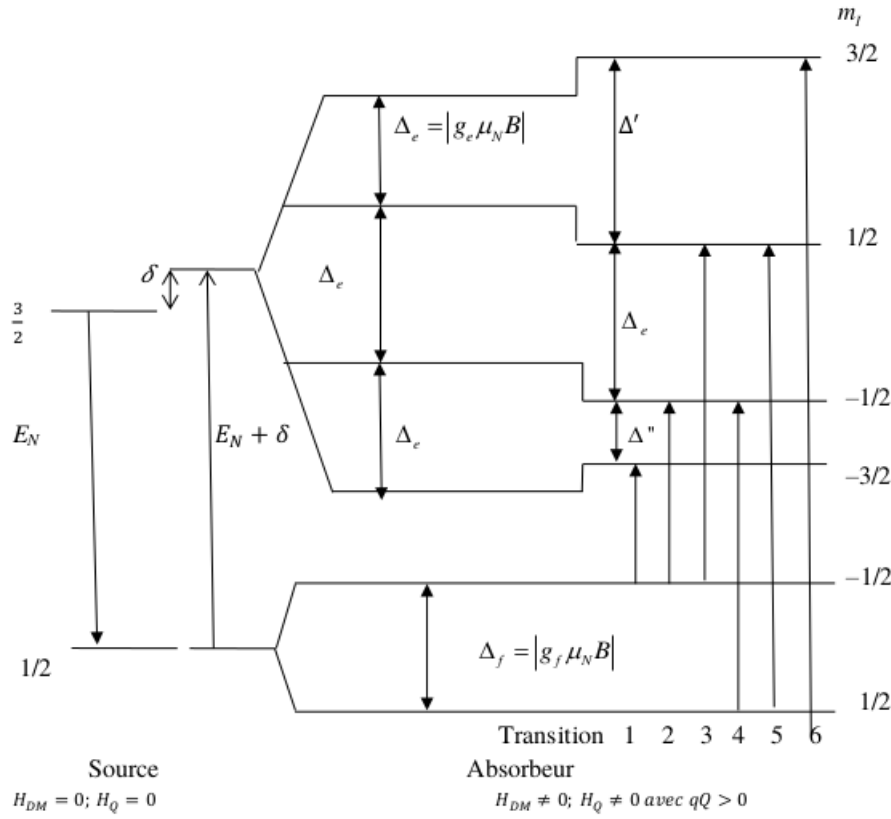


Figure 3.6: Transitions Mössbauer de  $^{57}\text{Fe}$  numérotées par ordre croissant de l'énergie.

résonnances pour ces 6 transitions sont telles que:

$$v_1 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (3\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz} e Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right); \quad (3.64)$$

$$v_2 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (\Delta_e + \Delta_f) - \frac{V_{zz} e Q}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right) \quad (3.65)$$

$$v_3 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{1}{2} (\Delta_e - \Delta_f) + \frac{V_{zz}eQ}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right); \quad (3.66)$$

$$v_4 = \frac{c}{E_N} \left( -\frac{1}{2} (\Delta_e - \Delta_f) - \frac{V_{zz}eQ}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right); \quad (3.67)$$

$$v_5 = \frac{c}{E_N} \left( \frac{1}{2} (\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz}eQ}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right); \quad (3.68)$$

$$v_6 = \frac{C}{E_N} \left( \frac{1}{2} (3\Delta_e + \Delta_f) + \frac{V_{zz}eQ}{2} \left( \frac{3\cos^2\alpha - 1}{2} \right) + \delta \right). \quad (3.69)$$

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est donnée par:

$$I(v) = 0,723 \times \sum_{j=1}^6 \frac{0,00934}{\left[ \left( v - \frac{c}{E_0} \delta_j \right)^2 + 0,00934 \right]} \quad (3.70)$$

avec  $\frac{c}{E_0} \delta_j = v_j$ ;  $j = 1, 2, \dots, 6$  définis précédemment.

Nous venons de trouver les expressions qui définissent les conditions de résonance pour toutes situations abordées dans notre travail. Cela nous permettra de tracer les spectres Mössbauer correspondants au chapitre qui suit.

## Chapitre 4

# SIMULATION ET INTERPRETATION DES RESULTATS

Dans les chapitres précédents, nous avons exprimé les vitesses de résonances pour la source Mössbauer (ne subissant aucune interaction) avec l'absorbeur identique soumis aux différentes situations d'interactions. Les spectres Mössbauer qui en résultent sont des résonances, chacune d'elles ayant la forme d'une courbe lorentzienne, qui est caractérisée par la position qui dépend de ces interactions, d'une largeur à mi-hauteur et d'intensité relative. Dans le présent chapitre, nous allons tracer ces spectres à l'aide du logiciel Maple 13 où l'axe des abscisses représente les vitesses  $v$  et l'axe des ordonnées l'intensité transmise en fonction de la vitesse  $I(v)$ . L'interprétation de ces spectres ainsi que leurs discussions feront également objet de ce chapitre.

### 4.1 Absence d'interactions dans la source et dans l'absorbeur.

En prenant:  $\beta = 2,19\%$ ,  $\sigma_0 = 2,355 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ,  $f_s = 0,71$ ,  $f_a = 0,7$ ,  $\delta = 0,226 \text{ mm/s}$ ,  $n = \frac{7,8 \times 6,02 \times 10^{23}}{57} \text{ atomes/cm}^3$ , l'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression (3.9) qui est ici représentée par la relation:

$$I(v) = \frac{0,006757379164}{[(v - v_j)^2 + 0,009344444440]}. \quad (4.1)$$

Le spectre Mössbauer correspondant est représenté dans la figure 4.1.

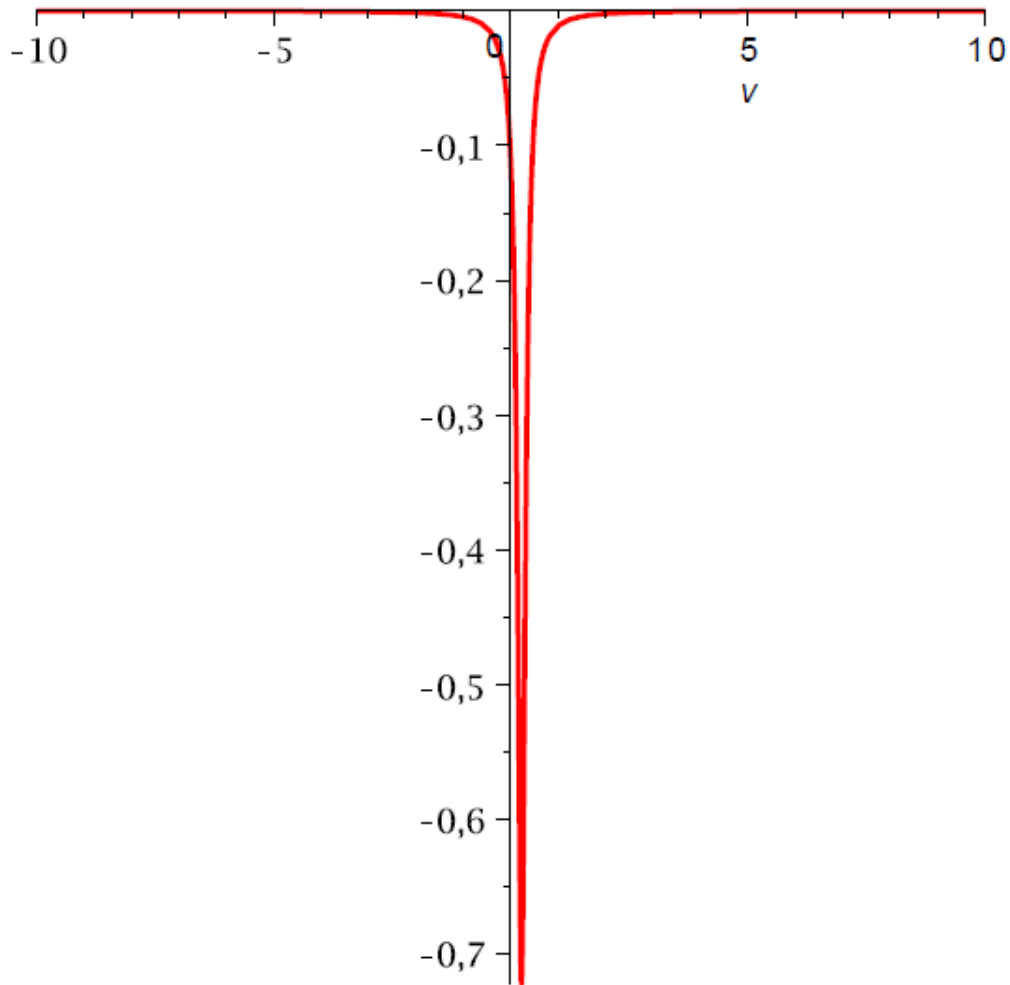


Figure 4.1: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source et l'absorbeur ne subissant pas d'interaction;  $\delta = 0,226 \text{ mm/s}$ .

## 4.2 Présence d'un champ magnétique seul dans l'absorbeur.

Avec les valeurs:  $B = 33 \text{ T}$ ,  $\delta = 0,226 \text{ mm/s}$ ,  $g_e = -0,103$ ,  $g_f = 0,18$ ,  $\mu_N = 0,505038 \text{ JT}^{-1}$ , les vitesses de résonances pour les six transitions de la figure 3.2 sont respectivement:

- ❖  $v_6 = 5,3400080200 \text{ mm/s}$  et  $v_1 = -4,888080200 \text{ mm/s}$ ;
- ❖  $v_5 = 3,185682406 \text{ mm/s}$  et  $v_2 = -2,733682406 \text{ mm/s}$  ;
- ❖  $v_4 = 1,031284612 \text{ mm/s}$  et  $v_3 = -0,5792846120 \text{ mm/s}$  .

En incorporant dans l'équation (3.19) ces différentes valeurs de vitesses de résonance, à l'aide du logiciel Mapple 13, nous obtenons le spectre Mossbauer représenté dans la figure 4.2.

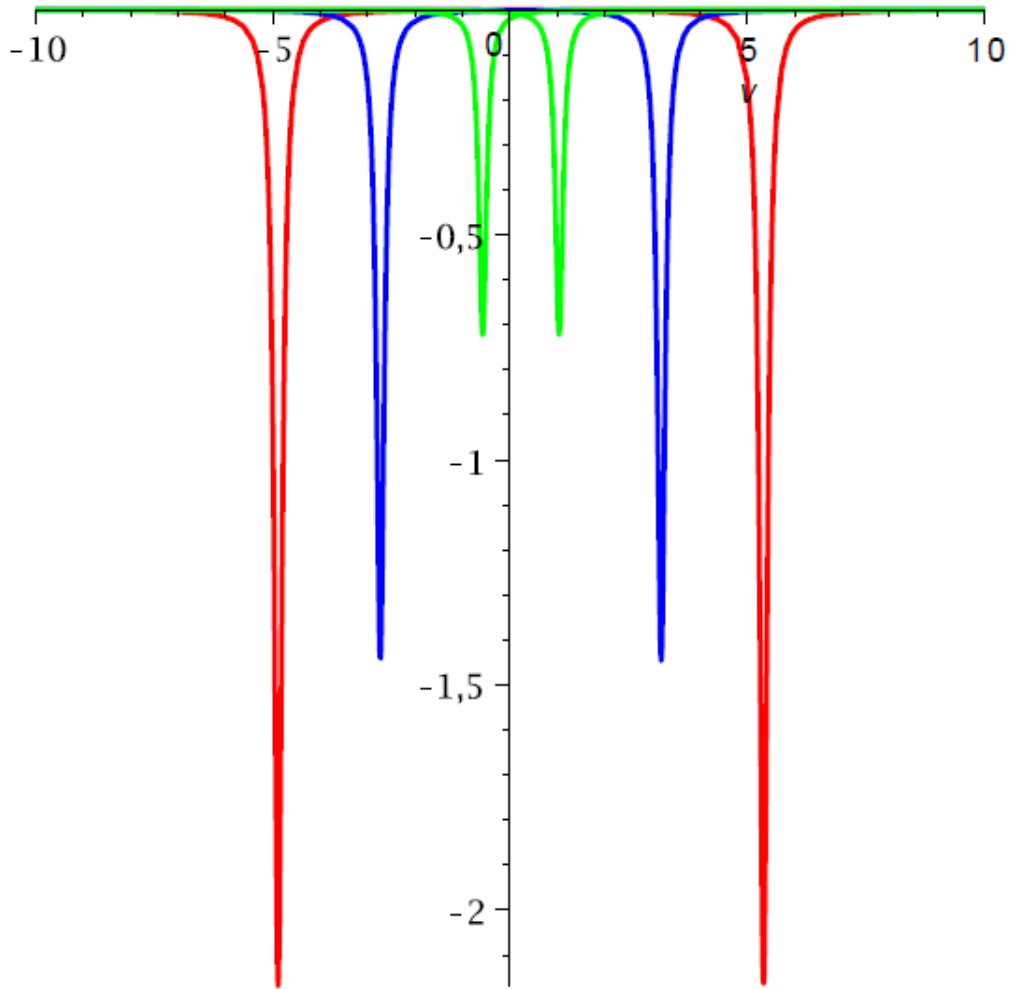


Figure 4.2: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique.

## 4.3 Présence d'une interaction quadripolaire dans l'absorbeur

### 4.3.1 Gradient de champ axial ( $\eta = 0$ )

En utilisant les valeurs de  $Q = 0,17 \text{ b}$ ,  $V_{zz} = 1,614 \text{ V/m}^2$  et  $e = 1,602 \times 10^{-19} \text{ C}$ , les vitesses de résonances dans la figure 3.3 sont:

$$v_1 = 0,2274314423 \text{ mm/s} \text{ et } v_2 = 0,2245685577 \text{ mm/s}$$

et le spectre Mössbauer correspondant, montré à la figure 4.3 est obtenu en incorporant ces valeurs de vitesse dans l'équation (3.29).

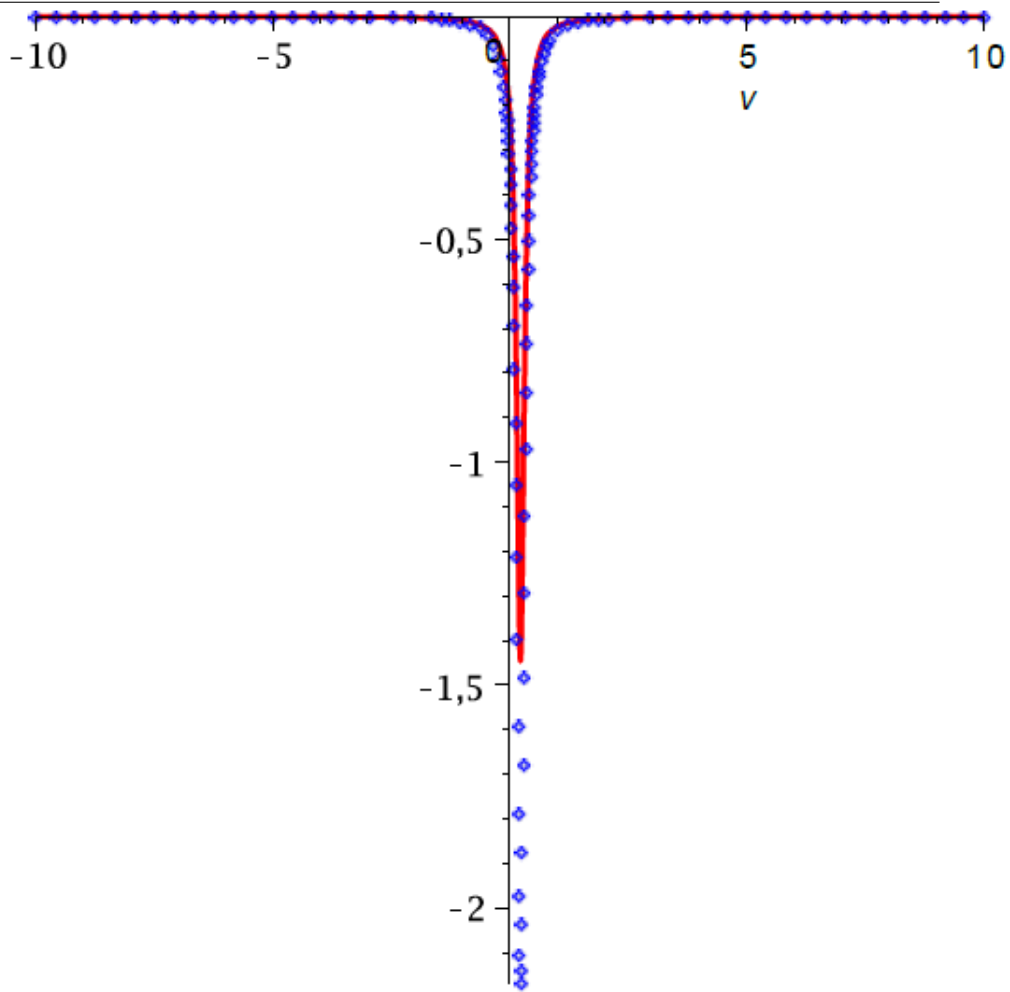


Figure 4.3: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction quadripolaire électrique.

### 4.3.2 Gradient de champ non axial ( $\eta \neq 0$ )

Pour  $\eta = 0, 1$ , les vitesses de résonances de la figure 3.4 sont:

$$v_1 = 0,2274290625 \text{ mm/s} \text{ et } v_2 = 0,2245709375 \text{ mm/s}.$$

Mettant ces valeurs dans la relation (3.40), le spectre Mössbauer correspondant est représenté dans la figure 4.4.

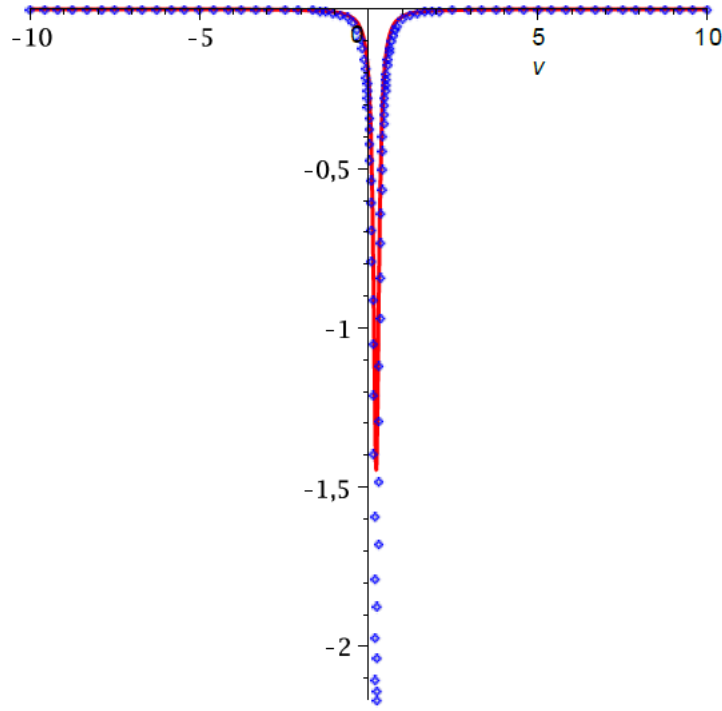


Figure 4.4: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction quadripolaire électrique.

## 4.4 Présence des interactions simultanées: interaction quadripolaire électrique combinée à une interaction dipolaire magnétique

### 4.4.1 Symétrie axiale ( $\eta = 0$ ), $\vec{B} // OZ'$ et $V_{zz} // OZ$

Les vitesses de résonance correspondant aux six transitions de la figure 3.5 sont:

- ❖  $v_6 = 5,341509262 \text{ mm/s}$  et  $v_1 = -4,889509262 \text{ mm/s}$ ;
- ❖  $v_5 = 3,187111468 \text{ mm/s}$  et  $v_2 = -2,735111468 \text{ mm/s}$ ;
- ❖  $v_4 = 1,032713674 \text{ mm/s}$  et  $v_3 = -0,5807136745 \text{ mm/s}$ .

Le spectre Mössbauer correspondant à ces transitions est donné dans la figure 4.5 en servant de la relation (3.57).

### 4.4.2 Champ magnétique $\vec{B}$ n'est pas parallèle au gradient de champ $V_{zz}(OZ' \nparallel OZ(\vec{B} \parallel V_{zz}), OZ' \nparallel OZ)$ .

Pour  $\alpha = 30^\circ$ , les vitesses de résonances pour les six transitions de la figure 3.6 sont:

- ❖  $v_6 = 5,341866528 \text{ mm/s}$  et  $v_1 = -4,889866528 \text{ mm/s}$ ;

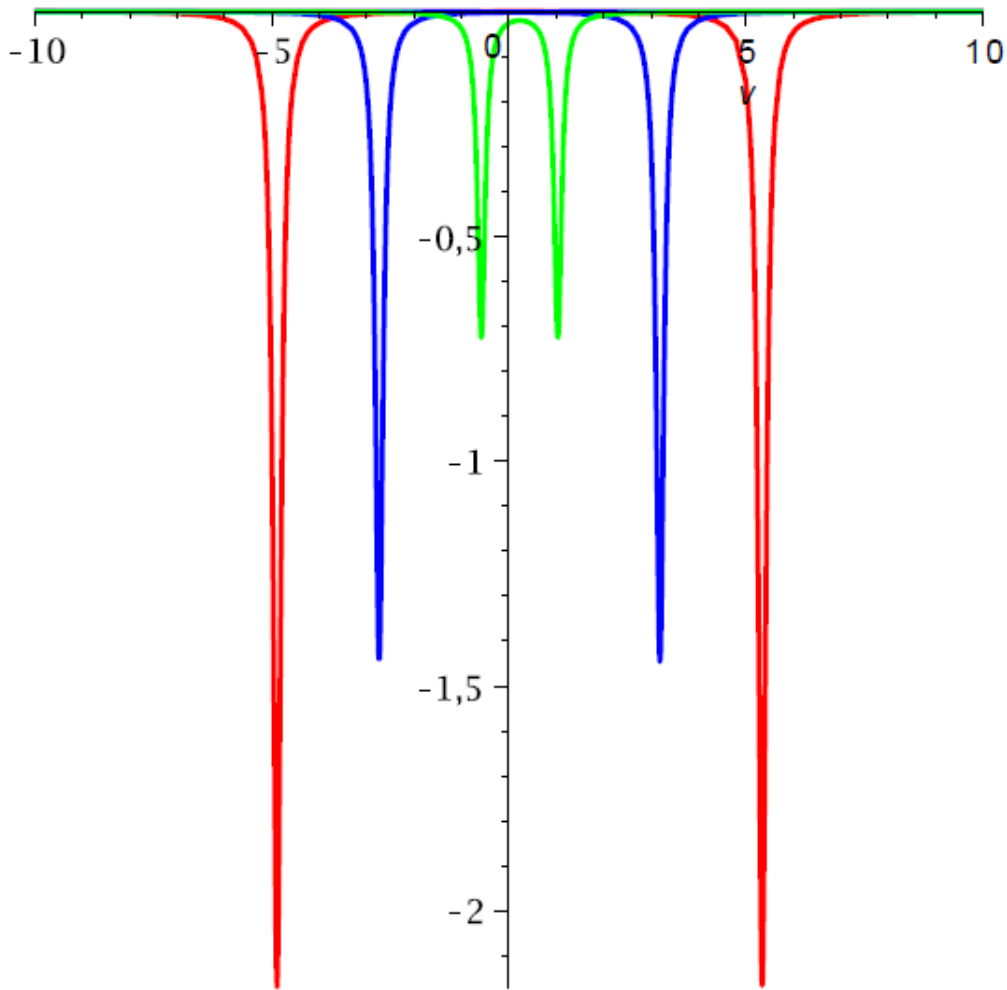


Figure 4.5: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique et quadripolaire électrique

❖  $v_5 = 3,187468734 \text{ mm/s}$  et  $v_2 = -2,735468734 \text{ mm/s}$ ;

❖  $v_4 = 1,033070940 \text{ mm/s}$  et  $v_3 = -0,5810709401 \text{ mm/s}$ .

L'intensité transmise en fonction de la vitesse est alors donnée par l'expression (3.70) et le spectre Mössbauer correspondant est représenté dans la figure 4.6.

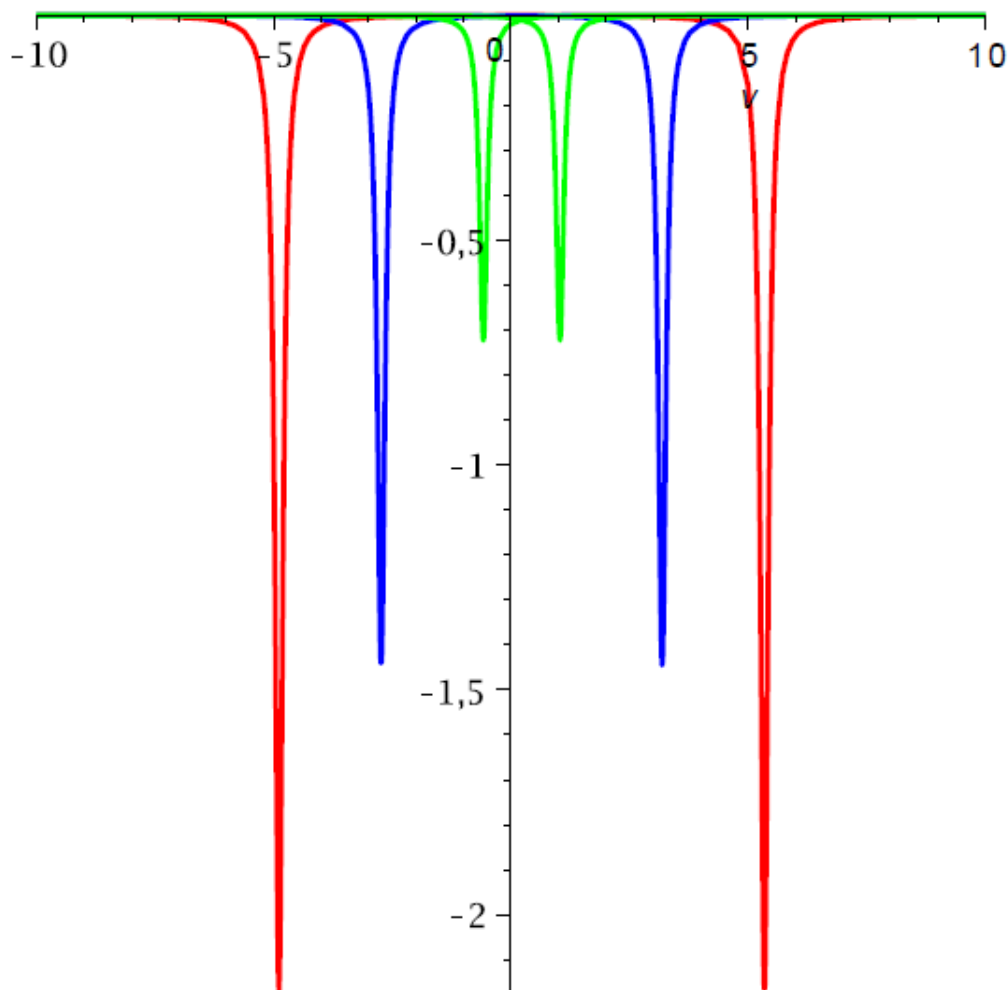


Figure 4.6: Spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ ; la source ne subit aucune interaction; l'absorbeur subit une interaction dipolaire magnétique et quadripolaire électrique.

## 4.5 Discussion et interprétation des résultats

Les spectres Mössbauer sont des spectres d'absorption, ce qui implique que les pics représentant les situations de résonances sont orientés vers le bas. Ces spectres dépendent essentiellement des 3 paramètres Mössbauer qui permettent de les quantifier: le déplacement isomérique, le couplage quadripolaire et le couplage dipolaire magnétique. Dans certaines situations, nous assistons aux phénomènes simultanés de ces trois paramètres. Dans ce qui suit, nous essayons de fournir systématiquement les effets de chaque paramètre tant individuel que simultané sur les spectres Mössbauer montrés dans les paragraphes précédents.

Les figures 4.2, 4.5 et 4.6 semblent être, au premier vue, identiques alors qu'elles ne le sont pas. Cela est dû aux interactions dipolaires magnétiques beaucoup plus intenses par rapport aux autres interactions (quadripolaire électrique par exemple).

### 4.5.1 Effet du déplacement isomérique

Dépendant du volume nucléaire, des charges nucléaires et de densités électroniques proches du noyau, le déplacement isomérique ou chimique traduit un décalage d'énergie de résonance de la source par rapport à l'absorbeur. L'effet de ce décalage sur le spectre Mössbauer se matérialise par un déplacement du pic de ce spectre par rapport à la valeur 0 de la vitesse dans un sens et dans l'autre selon qu'il est positif ou négatif. Pour notre cas cette translation s'effectue vers la droite de la vitesse nulle que le spectre soit monopolaire (aucune interaction) (Figure 4.1), quadripolaire (Figure 4.3 et 4.4), dipolaire magnétique (Figure 4.2) ou combiné (Figures 4.5 et 4.6). Pour les trois derniers, il s'agit d'un déplacement de l'ensemble du spectre. Comme son nom l'indique, il (déplacement isomérique) est fortement lié à la structure chimique de l'élément étudié et varie d'une source à une autre.

### 4.5.2 Effet quadripolaire électrique

La forme sphérique, oblate ou prolata est révélée par les valeurs du moment quadripolaire du noyau. Cette grandeur combinée au gradient du champ électrique donne lieu au couplage quadripolaire. L'effet de cette interaction hyperfine électrique pour les noyaux, dont les spins sont strictement supérieurs à  $1/2$ , est de lever partiellement les dégénérescences des niveaux d'énergie via une énergie d'interaction quadripolaire  $E_{m_I} = \frac{e^2qQ}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)]$  pour la symétrie axiale et  $E_{m_I} = \frac{e^2qQ}{12} \left(3m_I^2 - \frac{15}{4}\right) \sqrt{1 + \frac{\eta^2}{3}}$  pour la symétrie non axiale. Dans le spectre Mössbauer, cela est décrit par la présence d'un doublet qualifié d'éclatement quadripolaire. Le spectre présente alors deux pics orientés vers le bas (Figure 4.3 et 4.4). Pour notre cas du  $^{57}\text{Fe}$ , l'état excité se divise en deux sous niveaux correspondant à deux pics dans le spectre Mössbauer. Le paramètre d'asymétrie nous donne une information sur la symétrie par rapport à l'axe de l'élément considéré dans l'échantillon étudié. Plus ce paramètre augmente, plus l'asymétrie (désordre) s'amplifie.

### 4.5.3 Effet dipolaire magnétique

La séparation des niveaux d'énergie du  $^{57}\text{Fe}$  pour la transition Mössbauer a été possible sous l'effet d'un champ magnétique hyperfin. Cette levée de dégénérescence en  $(2I+1)$  sous niveaux provient du fait que pour un nombre quantique de spin  $I$  donné, le nombre magnétique  $m_I$  est obtenu de telle manière que  $-I \leq m_I \leq I$ , donc  $(2I+1)$  valeurs différentes de  $m_I$  chacune correspondant à un sous niveau énergétique. Pour la transition Mössbauer du  $^{57}\text{Fe}$  (figure 4.2), nous avons 6 valeurs d'énergie (les 6 sous niveaux d'énergie) et le spectre observé possède 6 pics équidistants correspondant à 6 énergies de

résonances traduites en termes de vitesses et dont les transitions obéissent à la règle de sélection  $\Delta m_I = 0, \pm 1$  de  $m_I$ . Cette équidistance traduit la répartition des atomes du  $^{57}\text{Fe}$  de façon régulière dans l'échantillon.

#### 4.5.4 Effet lié à la combinaison des interactions dipolaire magnétique et quadripolaire électrique

Dans le cas des interactions combinées, les paramètres caractéristiques de ces trois interactions agissent de façon simultanée. Chaque paramètre apporte sa contribution dans le spectre. Le déplacement isomérique traduit le déplacement du spectre dans son ensemble. L'introduction du gradient du champ et du moment quadripolaire électriques en combinaison avec l'interaction dipolaire magnétique permet au spectre Mössbauer de perdre progressivement son caractère symétrique au fur et à mesure que l'interaction quadripolaire augmente (figures 4.5 et 4.6). Bien plus l'augmentation du facteur d'asymétrie accentue la situation.

L'intensité absolue nous donne l'information sur la concentration de l'espèce dans l'échantillon étudié.

Pour juger la qualité des spectres tracés, leurs formes sont comparées aux spectres du  $^{57}\text{Fe}$  des travaux trouvés dans la littérature et montrés dans les figures 4.7, 4.8, 4.9, 4.10, 4.11, 4.12 et 4.13.

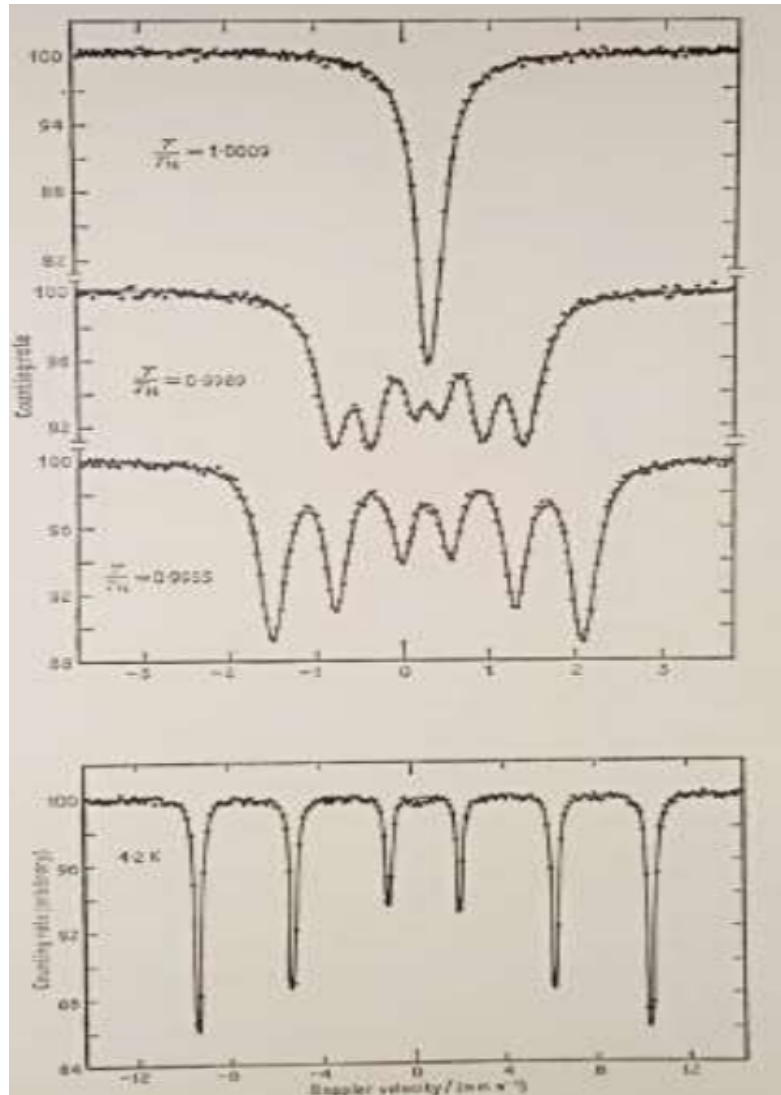


Figure 4.7: Spectre Mössbauer de  $\text{FeF}_3$  à 4,2 K et au voisinage de la température de Néel. [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 6.18, page 149]

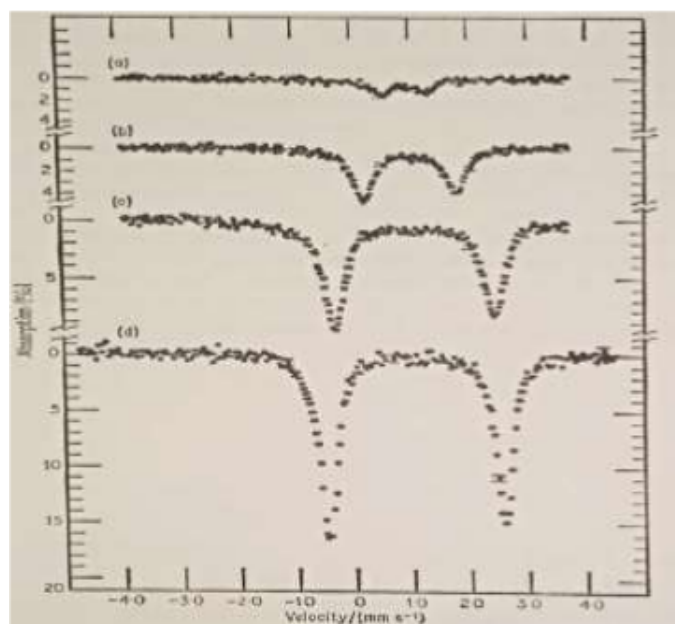


Figure 4.8: Spectres Mössbauer de  $(\text{Me}_4\text{N})_2\text{FeCl}_4$  [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 6.10, page 126].

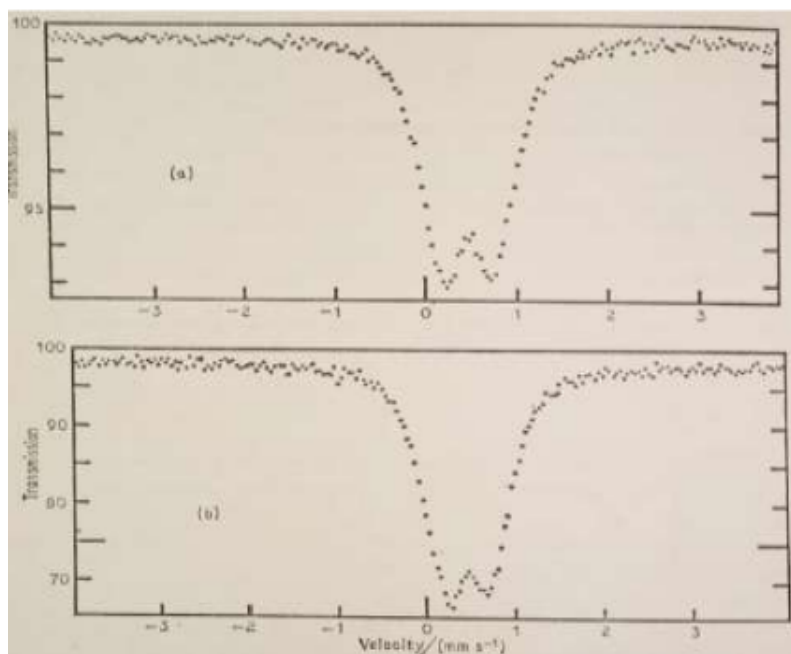


Figure 4.9: Spectre Mössbauer à 7 K pour “le bleu de Prusse” [Référence [Greenwood and Gibb, 1971], figure 7.8, page 180].

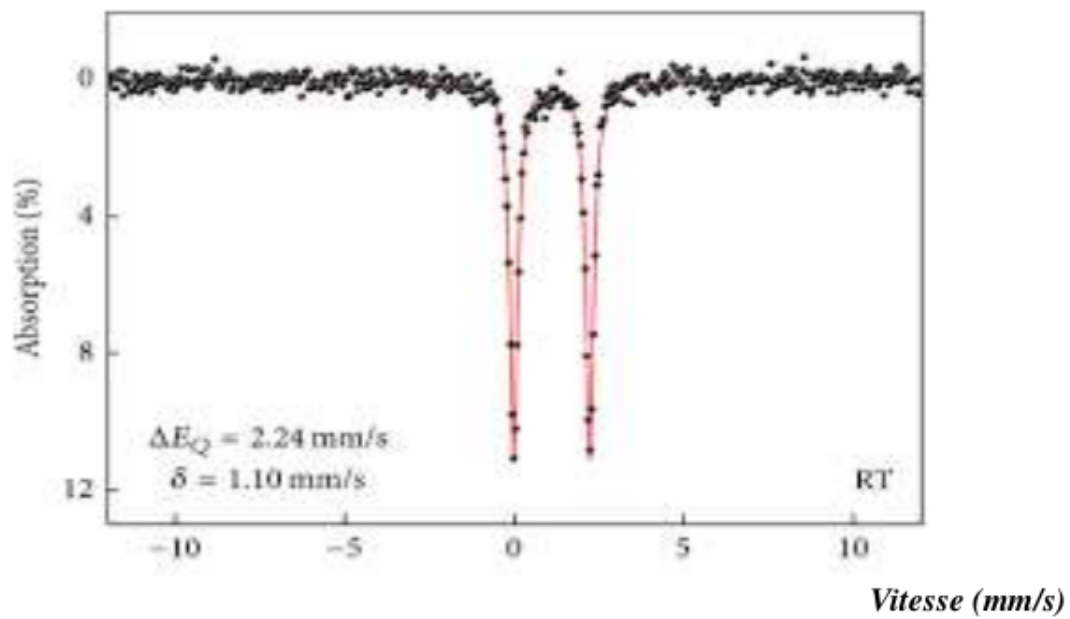


Figure 4.10: Spectre Mössbauer: source noyaux Fe soumis à une interaction quadripolaire électrique, les noyaux de l'absorbeur ne sont pas soumis à une interaction quadripolaire. Référence [Battle et al., 2007]

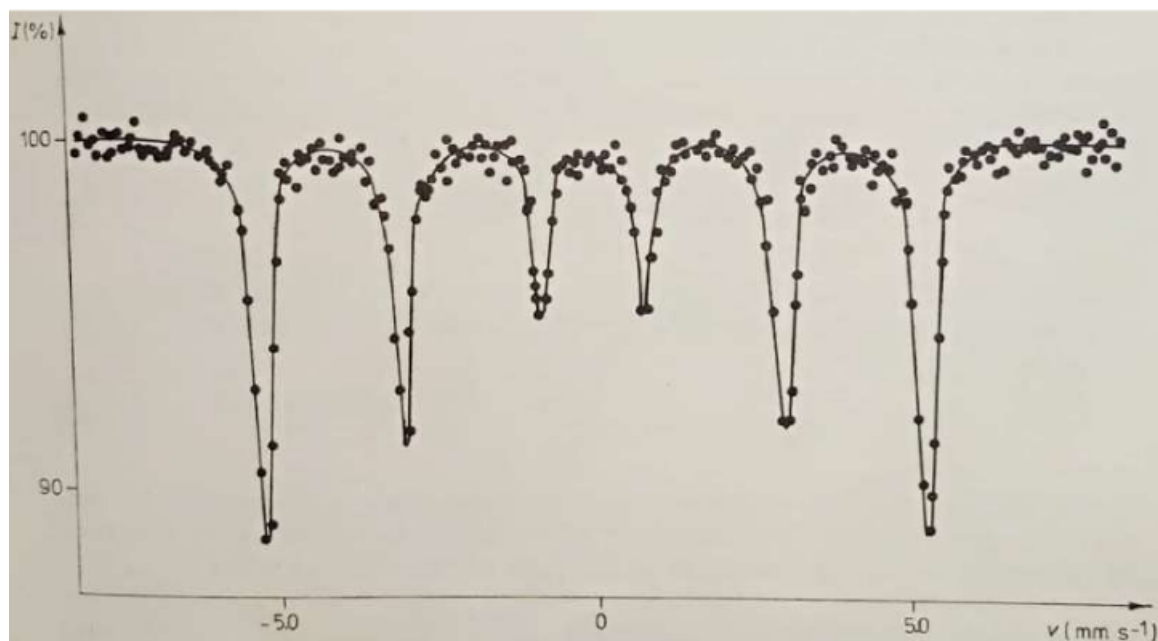


Figure 4.11: Spectre Mössbauer du fer métallique soumis à l'interaction dipolaire magnétique. [Référence [Vértes et al., 1979]].

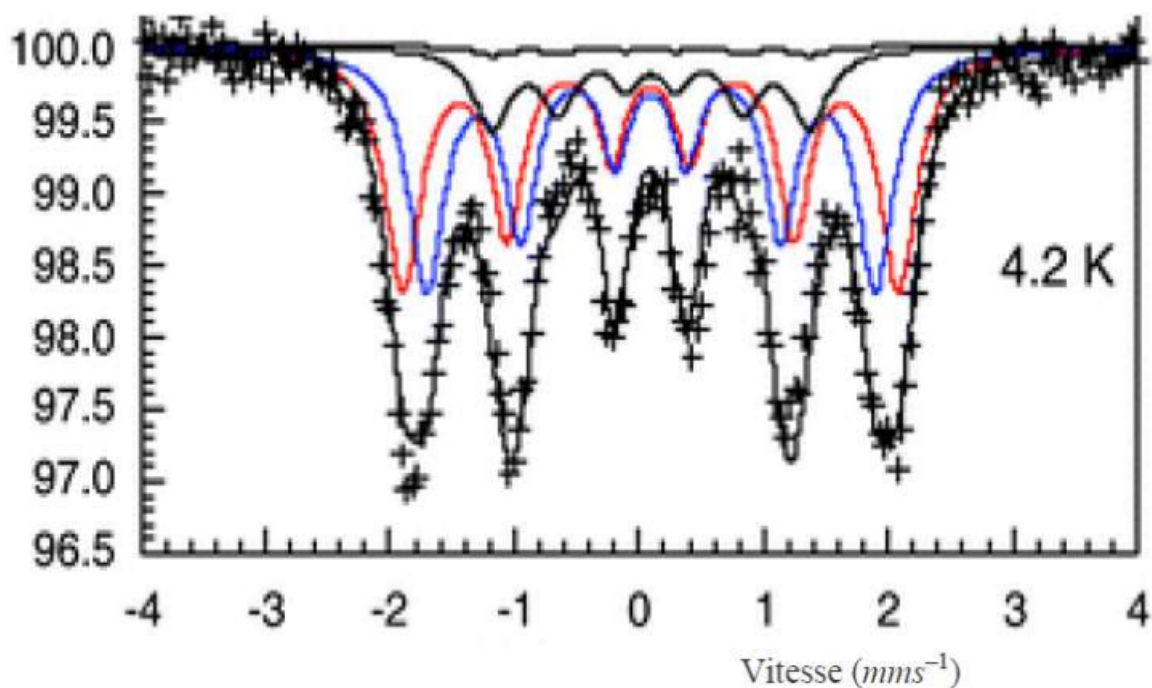


Figure 4.12: Spectre Mössbauer à  $T=4,2$  K (température d'hélium liquide), absorbeur  $\text{FeRhMN}$  (substance ferromagnétique), source  $^{57}\text{Co}(^{57}\text{Fe})\text{Rh}$ . Référence [Battle et al., 2007].

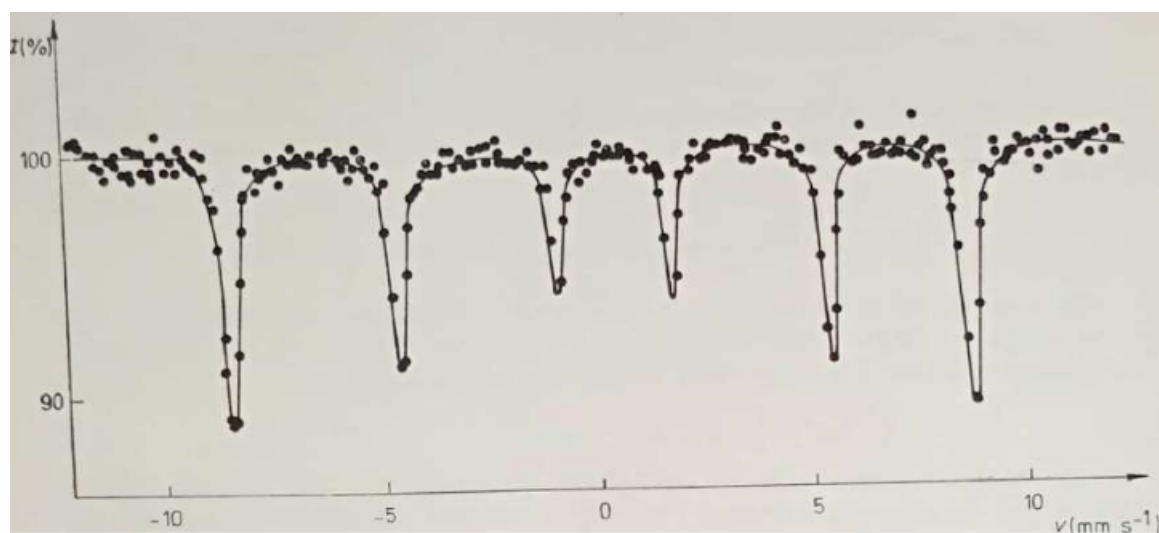


Figure 4.13: Spectre Mössbauer de  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  en raison de l'interaction magnétique et quadripolaire combinée, le spectre est asymétrique. [Référence [Vértes et al., 1979], figure I.27, page 84].

# CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Dans ce travail nous avons étudié l'effet des trois interactions telles que le déplacement isomérique, les interactions quadripolaire électrique et dipolaire magnétique ainsi que leurs combinaisons sur le spectre Mössbauer de la transition du  $^{57}\text{Fe}$ . Les paramètres Mössbauer qui permettent de les quantifier ont été mis en évidence.

Au premier chapitre, les éléments de la spectroscopie Mössbauer, les phénomènes de transitions nucléaires et leurs effets sur les noyaux émetteurs et absorbeurs ont été explicités.

Ces paramètres ont été ensuite décrits en général au second chapitre. Le déplacement isomérique traduit le décalage de la position du spectre. L'interaction quadripolaire électrique donne l'information sur la forme du volume nucléaire qui peut être sphérique, prolate ou oblate selon que le moment quadripolaire est nul, inférieur ou supérieur à zéro. Le paramètre d'asymétrie informe sur l'aspect de non symétrie axiale des formes susmentionnées. L'interaction quadripolaire électrique provoque la levée partielle de la dégénérescence. Le dédoublement Zeeman nucléaire est décrit par l'interaction dipolaire magnétique via le champ hyperfin pour les noyaux possédant un champ magnétique hyperfin non nul. Cette interaction traduit la levée totale de la dégénérescence en plusieurs sous-niveaux équidistants. Toutes les transitions obéissent aux règles de sélection.

Appliquées au cas du  $^{57}\text{Fe}$  pour les transitions Mössbauer, ces paramètres traduits en termes de vitesses permettent d'obtenir les conditions de résonances qui nous mènent vers l'obtention des spectres Mössbauer pour les trois types d'interactions susmentionnées. Ceci fut l'objet du troisième chapitre.

Au quatrième chapitre, avec les valeurs de certains paramètres comme  $B = 33\text{ T}$ ,  $\delta = 0,226\text{ mm/s}$ ,  $Q = 0,17b$ ,  $V_{zz} = 1,614\text{ V/m}^2$  nous avons calculé les différentes valeurs des vitesses qui correspondent aux différentes conditions de résonances des différents cas traités au troisième chapitre. Ces valeurs nous ont permis de simuler les résultats obtenus, via le logiciel Maple 13, pour trouver les graphiques des courbes des spectres Mössbauer. Les allures de ces spectres sont des courbes lorentziennes tournées vers le bas, ce qui prouve que ce sont des spectres d'absorption.

Ces spectres montrent que le déplacement isomérique traduit la position des spectres.

Le moment quadripolaire en interaction avec le gradient du champ électrique produisent un couplage quadripolaire dont l'énergie d'interaction contribue à la levée partielle de la dégénérescence des niveaux visualisée par deux pics dans le spectre Mössbauer obtenu. L'interaction dipolaire magnétique est visualisée dans le spectre par l'apparition des 6 pics de résonance. Ces pics étant équidistants, l'introduction de l'interaction quadripolaire électrique a tendance à rompre la symétrie rendant le spectre asymétrique. La méthode des perturbations a été employée pour estimer l'interaction faible par rapport à l'autre. Cela a concerné l'interaction quadripolaire électrique car elle est souvent plus faible pour le  $^{57}\text{Fe}$ .

Pour juger de la véracité des expressions analytiques établies, les allures des spectres trouvés ont été comparés à celles des spectres du  $^{57}\text{Fe}$  des travaux expérimentaux publiés dans la littérature scientifique et maintenue par le Mössbauer effect data center et dans les références [Greenwood and Gibb, 1971], [L.Cohen, 1976], [Nahimana et al., 2020], [Battle et al., 2007].

Nous constatons que pour  $I > \frac{3}{2}$  la résolution analytique devient de plus en plus compliquée. La variation des paramètres caractéristiques du  $^{57}\text{Fe}$  tels que le champ magnétique interne et externe et interaction quadripolaire électrique, n'ayant pas été faites, nous demandons aux lecteurs intéressés de bien vouloir étendre cette étude pour d'autres isotopes Mössbauer.

L'établissement de ces spectres Mössbauer a été limité au gradient de champ axial pour des raisons pratiques de simplicité. Pour des gradients non axiaux, l'analyse de tel cas demanderait plusieurs années avec des calculs relativement plus complexes et parfois avec un logiciel spécifique incluant des aspects de programmation poussée.

# Bibliographie

- [Abragam, 1964] Abragam, A. (1964). *L'effet Mössbauer et ses applications à l'étude des champs internes*. Gordon and Breach.
- [Aissani, 2014] Aissani, S. (2014). *Résonance quadripolaire de l'azote-14: amélioration de la qualité spectrale et effet d'un champ magnétique statique de faible amplitude*. PhD thesis, Université de Lorraine, France.
- [Appert, 2017] Appert, F. (2017). *Conception et réalisation de détecteurs dédiés à l'analyse de couches minces par spectrométrie Mössbauer: application à l'étude des propriétés magnétiques de films d'oxydes multiferroïques*. PhD thesis, Normandie, France.
- [Battle et al., 2007] Battle, P. D., Grandjean, F., Long, G. J., and Oldham, S. E. (2007). The influence of chemical composition on the magnetic properties of Fe. *Journal of Materials Chemistry*, 17(45):4785–4796.
- [Belfkir, 2016] Belfkir, M. (2016). Moment quadripolaire mesuré par résonance quadripolaire nucléaire : Principe et définition.
- [Benoit, ] Benoit, R. Mössbauer spectroscopy-gfsm. <http://www.sciencefrance.com>.
- [Chappert, 1967] Chappert, J. (1967). Couplage quadripolaire et structures cristallographiques et magnétiques de quelques composés ioniques du fer. *Journal de Physique*, 28(7):555–562.
- [Cohen-Tannoudji, 2007] Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. L. (2007). *Mécanique quantique*, volume 2. Hermann.
- [Cotton, 1960] Cotton, E. (1960). Emission and absorption of gamma-rays without recoil of the emitting nucleus, held in a crystal lattice (Mössbauer effect). *J Phys Radium*, 21(5):265–287.
- [Fiona McMillan, 2022] Fiona McMillan, Thomas Graham House, M. R. (consulté le 28 février 2022). Introduction to Mössbauer spectroscopy part 1. <https://www.rsc.org/membership-and-community/connect-with-others/through-interests/interest-groups/Mössbauer/>.

- [Fiona McMillan, 2021] Fiona McMillan, Thomas Graham House, M. R. (Consulté le 3 juin 2021). Introduction to Mössbauer spectroscopy part 2. <https://www.rsc.org/membership-and-community/connect-with-others/through-interests/interest-groups/Mössbauer/>.
- [Gradshteyn and Ryzhik, 2014] Gradshteyn, I. S. and Ryzhik, I. M. (2014). *Table of integrals, series, and products*. Academic press.
- [Greenwood and Gibb, 1971] Greenwood, N. N. and Gibb, T. C. (1971). Mössbauer spectroscopy. *Chapman and Hall Ltd., London*, 12:10–11.
- [Hoy and Odeurs, 2012] Hoy, G. R. and Odeurs, J. (2012). Interpretation of the photon: wave–particle duality. *Canadian Journal of Physics*, 90(9):855–863.
- [Janot, 1972] Janot, C. (1972). *L’effet Mössbauer et ses applications à la physique du solide et à la métallurgie physique*. Number 8. Masson.
- [Klingelhofer et al., 2003] Klingelhofer, G., Bernhardt, B., Foh, J., Bonnes, U., Rodionov, D., De Souza, P., Schröder, C., Gellert, R., Kane, S., Gütlich, P., et al. (2003). The miniaturized Mössbauer spectrometer mimos ii for extraterrestrial and outdoor terrestrial applications: A status report. In *Mössbauer Spectroscopy*, pages 371–379. Springer.
- [Klingelhöfer, 2005] Klingelhöfer, G. (2005). Mössbauer in situ studies of the surface of mars. In *HFI/NQI 2004*, pages 117–124. Springer.
- [Krane and Halliday, 1988] Krane, K. S. and Halliday, D. (1988). Introductory nuclear physics, john wiley&sons. *Inc., Kanada*.
- [L.Cohen, 1976] L.Cohen, R. (1976). *Elements of Mössbauer spectroscopy*, volume 1.
- [Longworth and Window, 1971] Longworth, G. and Window, B. (1971). The preparation of narrow-line Mössbauer sources of  $^{57}\text{Co}$  in metallic matrices. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 4(6):835.
- [Loudon, 2000] Loudon, R. (2000). *The quantum theory of light*. OUP Oxford.
- [Martinho and Münck, 2010] Martinho, M. and Münck, E. (2010).  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectroscopy in chemistry and biology. *Physical Inorganic Chemistry: Principles, Methods, and Models*, Wiley Online Library, pages 39–67.
- [Nagy, 1994] Nagy, D. (1994). Trends in Mössbauer emission spectroscopy of  $^{57}\text{Co}/^{57}\text{Fe}$ . *Hyperfine Interactions*, 83(1):1–19.

- [Nahimana et al., 2020] Nahimana, B., Barancira, T., and Odeurs, J. (2020). Elargissement du spectre Mössbauer dû aux noyaux résonnants dans la source. *Journal of the University of Burundi*, 28(1):27–35.
- [Odeurs, 1995] Odeurs (1995). Mössbauer-nmr double resonance: A completely quantized quasi-static approach. *Hyperfine Interactions*, 96(1):177–194.
- [Odeurs and Hoy, 1999] Odeurs, J. and Hoy, G. R. (1999). Nuclear ground states dressed with rf photons in Mössbauer–Zeeman  $^{57}\text{Fe}$  spectroscopy. *Hyperfine interactions*, 120(1):175–179.
- [Odeurs and Hoy, 2000] Odeurs, J. and Hoy, G. R. (2000). Gamma-nmr double resonance: A dressed state approach. *Laser and Particle Beams*, 18(1):129–134.
- [Odeurs and Hoy, 2007] Odeurs, J. and Hoy, G. R. (2007). Quantum mechanical theory of the emission spectrum of Mössbauer sources submitted to self-absorption: An exact result for source line broadening. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 254(1):143–148.
- [Odeurs, 1996] Odeurs, J. N. (1996). Le spectre d’émission d’un ensemble de noyaux de spin  $3/2$  soumis à une interaction magnétique statique combinée à un faible gradient de champ électrique et un rayonnement électromagnétique. *Revue de l’Université du Burundi* 18,51.
- [Schünemann and Paulsen, 2011] Schünemann, V. and Paulsen, H. (2011). Mössbauer spectroscopy. *Encyclopedia of Inorganic and Bioinorganic Chemistry, Wiley Online Library*.
- [Varret and Jehanno, 1975] Varret, F. and Jehanno, G. (1975). Étude Mössbauer des propriétés électroniques, magnétiques et hyperfines de  $\text{Fe}^{2+}$  dans les fluosilicates. *Journal de Physique*, 36(5):415–426.
- [Vértes et al., 1979] Vértes, A., Korecz, L., and Burger, K. (1979). *Mössbauer spectroscopy*. Study in physical and theoretical chemistry, Akadémiai Kiado, Budapest.
- [Walker et al., 1961] Walker, L., Wertheim, G. K., and Jaccarino, V. (1961). Interpretation of the  $^{57}\text{Fe}$  isomer shift. *Physical Review Letters*, 6(3):98.