

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ И ВРЕМЕННЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ВЫХОДА ВТОРИЧНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ С РАЗЛИЧНЫХ ГЛУБИН В УСЛОВИЯХ МЕССБАУЭРОВСКОГО ПОЛНОГО ВНЕШНЕГО ОТРАЖЕНИЯ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

М.А.Андреева

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 12 октября 1995 г.

После переработки 14 ноября 1995 г.

Теоретически показано, что когерентное поле излучения, формирующееся в условиях полного внешнего отражения импульса синхротронного излучения от резонансного образца, определяет возникновение задержанного во времени отклика нерезонансных примесных атомов (флуоресцентного излучения, выхода оже- и фотоэлектронов), причем как энергетическая, так и временная зависимости этого излучения явно характеризуют глубину, на которой оно образовалось.

Использование импульсного синхротронного излучения для изучения ядерного резонансного рассеяния в образцах, содержащих мессбауэровские ядра, означает возникновение нового метода исследования сверхтонких взаимодействий – "временной мессбауэровской спектроскопии" (см., например, [1,2] и ссылки там). Ввиду существенного различия времен ядерного резонансного ($\sim 10^{-8}$ с для ^{57}Fe) и релеевского ($\sim 10^{-15}$ с) рассеяний при временных измерениях происходит эффективная фильтрация резонансного излучения. При наличии сверхтонкого расщепления ядерных уровней временные спектры ядерного резонансного рассеяния обнаруживают квантовые осцилляции [3,4]. Когерентные эффекты, возникающие при поглощении в толстых поглотителях, при ядерной резонансной дифракции на кристаллической решетке или при полном внешнем отражении, для изучения которых синхротронное излучение особенно пригодно, также проявляются на временных спектрах в виде динамических осцилляций.

В условиях когерентного взаимодействия разделение по времени электронного и ядерного каналов рассеяния становится невозможным. Яркой иллюстрацией этого явилось наблюдение "интерференционного пика" вблизи критического угла полного внешнего отражения для задержанной интенсивности отражения от мессбауэровского зеркала [5-8], который не может быть объяснен при рассмотрении чисто ядерного рассеяния. Прямым свидетельством существования возбуждения электронной подсистемы резонансного образца для времен, значительно превышающих время релеевского рассеяния синхротронного импульса, в условиях когерентного взаимодействия мог бы быть выход соответствующего вторичного излучения.

В данной работе обсуждаются особенности выхода вторичного излучения (неупругое рассеяние), которое, как известно, наиболее явно отражает структуру поля излучения в образце, в условиях полного внешнего отражения от резонансного образца по аналогии с методом стоячих рентгеновских волн [9,10]. Резонансный характер взаимодействия в нашем случае позволяет использовать не только угловые зависимости выхода вторичного излучения для

получения информации о локализации излучающих резонансных и примесных атомов, но и энергетические и, соответственно, временные зависимости.

В нашем рассмотрении имеет смысл различать два вида вторичного излучения. То, которое сопровождает ядерное резонансное поглощение (конверсионные электроны и последующее рентгеновское излучение, оже-электроны), мы будем для краткости называть "резонансным" вторичным излучением. Фотоэлектроны и последующее рентгеновское излучение, оже-электроны, образование которых связано с нерезонансным фотопоглощением, будем называть "нерезонансным" вторичным излучением. С теоретической точки зрения такое разделение оправдано специфичностью их энергетических и временных зависимостей. В эксперименте, безусловно, невозможно разделить, например, фото- и конверсионные электроны, испускаемые ^{57}Fe , однако флуоресцентное излучение примесных атомов в резонансном образце можно наблюдать отдельно.

Ранее нами было показано [11,12], что выход фотоэлектронов (и вообще "нерезонансного" вторичного излучения) в условиях полного внешнего отражения от мессбауэровского зеркала приобретает энергетическую зависимость вследствие изменения амплитуды поля излучения в образце при изменении энергии падающего излучения в окрестности резонанса. Иными словами, резонансная стоячая волна определяет особенности выхода как "резонансного", так и "нерезонансного" вторичных излучений. Соответственно, на временной шкале это означает, что в условиях когерентного взаимодействия с резонансным образцом "нерезонансное" вторичное излучение будет наблюдаться в течение времени, соответствующего коллективному распаду резонансной системы. Существенно, что как энергетическая, так и временная зависимости обоих видов вторичного излучения непосредственно зависят от локализации атомов, испускающих это излучение.

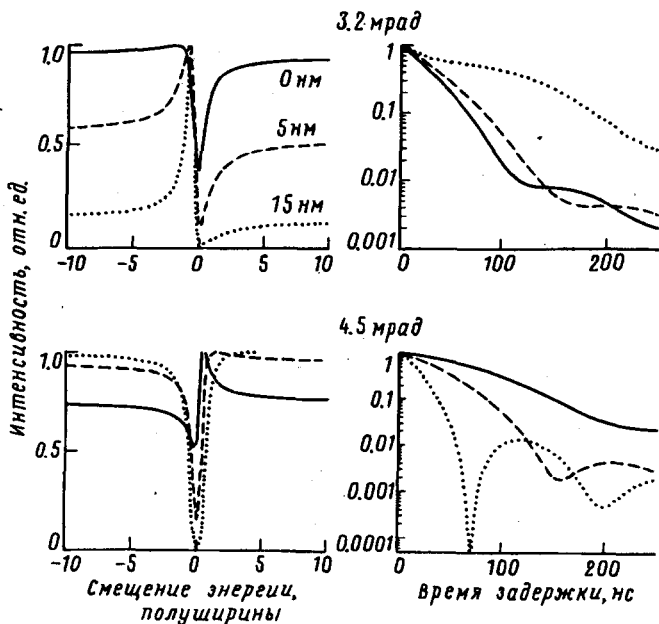


Рис.1. Энергетические (слева) и соответствующие им временные (справа) спектры "нерезонансного" вторичного излучения, образовавшегося на различных глубинах (0 - сплошные линии, 5 - штриховые линии и 15 нм - пунктирные линии) в полубесконечном резонансном образце. Расчеты представлены для двух углов скольжения падающего излучения (3.2 и 4.5 мрад) вблизи критического угла полного внешнего отражения (3.8 мрад для выбранного значения χ_c). Временные спектры нормированы на $\exp(-\Gamma t)$ и на 1 при $t = +0$

На рис.1 представлены энергетические спектры и соответствующие им временные спектры "нерезонансного" вторичного излучения атомов, расположен-

ных на различных глубинах в резонансном образце. Расчеты проведены для простейшей модели однородного полубесконечного резонансного образца, ядерная (χ_n) и электронная (χ_e) восприимчивости которого выбраны в виде

$$\chi_n = -\frac{F}{x+i}, \quad x = \frac{\hbar(\omega - \omega_R)}{\Gamma/2}, \quad F = 14.0 \cdot 10^{-6}, \quad \Gamma = 0.4 \text{ мм/с}, \quad (1)$$

$$\chi_e = (-14.6 + 0.7i) \cdot 10^{-6}, \quad (2)$$

где ω_R – резонансная частота; ширина резонансной линии Γ выбрана значительно больше естественной ширины мессбауэровского уровня в ^{57}Fe из тех соображений, что нерасщепленная резонансная линия может быть в пленке железа с большим содержанием примесей, что приводит к значительному неоднородному уширению и уменьшению абсолютного значения ядерной восприимчивости χ_n .

Общая теория выхода вторичного излучения в условиях полного внешнего отражения от мессбауэровского зеркала изложена в [12,13]. Фурье-преобразование для расчета временных спектров осуществляется для амплитуды вероятности образования вторичного излучения на глубине z ¹⁾:

$$A_s(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} A_s(z, \omega) e^{-i\omega t} dt, \quad (3)$$

где для случаев "резонансного" ($s = n$) и "нерезонансного" ($s = e$) вторичных излучений, вводя нормировку на интенсивность падающей волны, мы полагаем соответственно

$$A_n(z, \omega) = (w_n F k / \sin \theta)^{1/2} \frac{E(z, \omega)}{x+i},$$

$$A_e(z, \omega) = (w_e \text{Im} \chi_e k / \sin \theta)^{1/2} E(z, \omega), \quad (4)$$

где коэффициенты w_n , w_e определяют число интересующих нас вторичных частиц, образующихся при поглощении одного кванта падающего излучения, $k = 2\pi/\lambda$, θ – угол скольжения (для случая ^{57}Fe в наших расчетах $\lambda = 0.086$ нм). Амплитуда поля излучения $E(z, \omega)$ (резонансная стоячая волна) рассчитывалась в простейшей модели по формуле Френеля. Если положить для простоты функцию выхода вторичного излучения равной единице, то квадраты модулей амплитуд $|A_s(z, \omega)|^2$, $|A_s(z, t)|^2$ представляют энергетические и временные спектры выхода соответствующего вторичного излучения. Для случая "нерезонансного" вторичного излучения они изображены на рис.1.

Отметим, что временные спектры выхода вторичного излучения анализировались в [15], однако в этой работе не рассматривалось наиболее интересное для нас "нерезонансное" вторичное излучение и расчеты проводились для схемы задержанных совпадений, в которой возбуждающий импульс имеет временную структуру, отвечающую естественному распаду мессбауэровского уровня ядер в источнике, а не дельта-функции, как в случае импульса синхротронного излучения. Не рассматривалась в этой работе и возможность дифференциальных по глубине исследований.

¹⁾ Такое представление имеет место в предположении, что возбуждающий импульс синхротронного излучения является практически мгновенным (prompt). Это предположение соответствует экспериментальным условиям на синхротронах, где проводятся исследования ядерного резонансного рассеяния (см., например, [1,2,6,7,14]), где длительность импульсов составляет $\sim 0.1 \div 0.2$ нс.

Поскольку мы рассматриваем здесь для простоты одиночную резонансную линию, осцилляции на временных спектрах обусловлены только динамическим взаимодействием. Выбранная нормировка временных спектров позволяет непосредственно видеть эффект ускорения (speed-up effect) коллективного распада в условиях полного внешнего отражения. Обратим внимание на диапазон глубин ($0 \div 15$ нм), для которых проведены расчеты, – существенное изменение структуры поля излучения и, соответственно, формы энергетических и временных спектров происходит, действительно, в ультратонких поверхностных слоях.

Рисунок ясно показывает, что исследование, скажем, временного спектра флуоресцентного излучения нерезонансных примесных атомов в резонансном образце однозначно определяет глубину их расположения. Идеальным образцом для наблюдения обсуждаемого эффекта была бы достаточно толстая (≥ 50 нм) пленка ^{57}Fe , включающая на фиксированной глубине ультратонкую прослойку ($\sim 0.2 \div 0.5$ нм) любого элемента, для которого K - или L -линию флуоресцентного излучения можно отделить от флуоресцентного излучения атомов железа ($Z > 8$, $Z \neq 26$). Добавим, что для экспериментов по полному отражению необходимы образцы с достаточно большой (\sim нескольких сантиметров в направлении пучка) супергладкой поверхностью [6,7,10,14,16]. В качестве более реального возможного объекта исследования можно рассмотреть, например, тонкую пленку ^{57}Fe (≤ 20 нм), напыленную на стеклянную подложку. Если подложка была получена методом разливания стекла на жидкое олово (как, например, в [16]), то поверхностный слой стекла содержит значительное количество примесных атомов олова, и толщина переходного слоя на границе пленка – подложка, в который проникает олово, может быть определена по форме временного спектра его флуоресцентного излучения. Расчет резонансной стоячей волны в этом случае должен проводиться по более общим формулам, описывающим отражение от системы: резонансная пленка – подложка. Интересными объектами для подобных исследований "нерезонансного" вторичного излучения являются многослойные синтетические структуры, составленные из чередующихся слоев резонансных и нерезонансных атомов.

Для увеличения скорости счета измерения на синхротроне часто проводят в интегральном временном режиме, исключая только мгновенный отклик. В этом случае информацию о локализации излучающих атомов также дает, как и в случае метода стоячих рентгеновских волн, угловая зависимость регистрируемого сигнала. На рис.2 представлены результаты расчета такой зависимости для "резонансного" и "нерезонансного" вторичных излучений атомов, расположенных на различной глубине. "Выедание" интенсивности вторичного излучения со стороны малых углов для излучающих с больших глубин атомов вполне аналогично изменениям кривых по углу выхода в скользящей рентгеновской дифракции, где селекция атомов по глубине возможна при изменении угла дифракции [17]. Интересно отметить, что абсолютная интенсивность "резонансного" вторичного излучения убывает с глубиной, а "нерезонансного" возрастает (напомним, что мы здесь пренебрегаем поглощением вторичного излучения; для рассматриваемых здесь глубин ~ 10 нм это вполне оправдано даже для случая вторичных электронов). Этот факт является свидетельством того, что условия формирования коллективного возбуждения различны для поверхностных областей и в объеме.

Исследования вторичных излучений, возникающих при взаимодействии синхротронного излучения с мессбауэровскими поглотителями, уже начались [18].

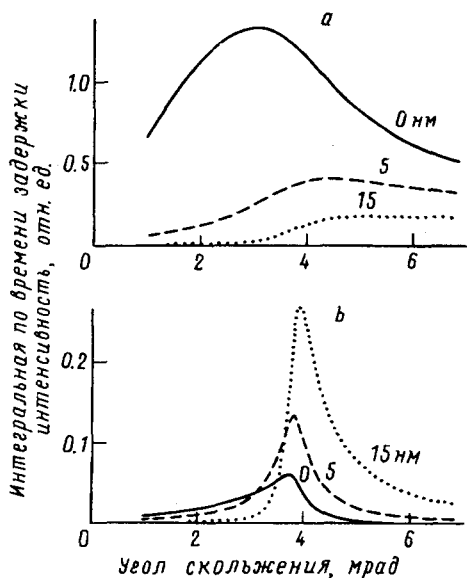


Рис.2. Угловые зависимости интегральной по времени задержки (в интервале $1 \div 300$ нс) интенсивности "резонансного" (а) и "нерезонансного" (б) вторичных излучений (в относительных единицах) для атомов, расположенных на различных глубинах (0, 5 и 15 нм) в полубесконечном резонансном образце. Расчетные параметры те же, что и для рис.1

Они открывают, с нашей точки зрения, чрезвычайно интересную область структурных исследований, а в условиях полного внешнего отражения могут дать уникальную информацию о профилях распределения различных атомов в ультратонких поверхностных слоях.

Работа поддержана ISF грантом R62000, автор выражает искреннюю признательность этому фонду.

1. R.Rüffer, E.Gerdau, M.Grote et al., Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A303, 495 (1991).
2. W.Sturhahn and E.Gerdau, Phys. Rev. B49, 9285 (1994).
3. G.T.Trammell and J.P.Hannon, Phys. Rev. B18, 165 (1994).
4. Yu.Kagan, A.M.Afanasyev, and V.G.Kohn. J. Phys. C: Solid State Phys. 12, 615 (1979).
5. L.Deak, L.Bottyan, and D.L.Nagy, Hyperfine interactions 92, 1083 (1994).
6. A.Q.R.Baron, J.Arthur, S.L.Ruby et al., Phys. Rev. B50, 10354 (1994).
7. T.S.Toellner, W.Sturhahn, R.Rolsberger et al., Phys. Rev. Lett. 74, 3475 (1995).
8. M.A.Andreeva, Book of abstracts ICAME'95, (Rimini, Italy), 13-33.
9. М.В.Ковальчук, В.Г.Кон, УФН 149, 69 (1986).
10. M.Bedzyk, G.M.Bommarito, and J.S.Schildkraut, Phys. Rev. Lett. 62, 1376 (1989).
11. М.А.Андреева, Г.Н.Белозерский, О.В.Гришин и др., Письма в ЖЭТФ 55, 62 (1992) [JETP Lett. 55, 63 (1992)].
12. М.А.Андреева, С.М.Иркаев, В.Г.Семенов, ЖЭТФ 105, 1767 (1994).
13. S.M.Irkaev, M.A.Andreeva, V.G.Semenov et al., Nucl. Instrum. and Meth. In Phys. Res. B74, 554 (1993).
14. R.Röhlberger, E.Gerdau, E.Lüken et al., Z. Phys. B92, 489 (1993).
15. В.Г.Барышевский, С.А.Максименко. Поверхность №3, 42 (1986).
16. S.A.Isaenko, A.I.Chumakov and S.I.Shinkarev, Phys. Lett. A186, 274 (1994).
17. М.А.Андреева, Поверхность №12, 17 (1988); Вестн. Моск. Ун-та, сер. 3, 30, 52 (1989).
18. W.Sturhahn, K.W.Quast, J.Metge et al., Book of abstracts ICAME'95, (Rimini, Italy), 12-26.