

## НЕУПРУГОЕ КОГЕРЕНТНОЕ МЕССБАУЭРОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ВПЕРЕД

В.А.Беляков<sup>1)</sup>

Институт теоретической физики им.Л.Д.Ландау РАН  
117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 ноября 1997 г.

Представлен теоретический анализ возможностей выполнения условий фазового синхронизма (ФС) в неупругом (сопровожаемом рождением или уничтожением фононов) когерентном мессбауэровском рассеянии (НКМР) синхротронного излучения (СИ) и изучены условия достижения максимальной интенсивности НКМР. Из двух типов НКМР (1) участия фононов в акте рассеяния только на стадии поглощения или переизлучения кванта и 2) участия фононов на обеих стадиях рассеяния) только в первом типе НКМР возможно достижение ФС. Процесс, в котором фононы участвуют только на стадии поглощения кванта, приводит к эффективной конверсии СИ из широкой спектральной линии СИ в узкую линию, определяемую шириной мессбауэровского перехода. Кванты этого типа НКМР эффективно обладают большей проникающей способностью, чем обычное мессбауэровское излучение, а их спектральное распределение оказывается несколько сдвинуто в сторону низких частот.

PACS: 75.25.+z, 76.80.+y

Быстрый прогресс в мессбауэровской спектроскопии с применением синхротронного излучения (СИ) [1] привел к возникновению нового типа спектроскопии с уникально высоким энергетическим разрешением, ограниченным только шириной мессбауэровской линии (например,  $10^{-8}$  эВ для наиболее популярного мессбауэровского изотопа  $F^{57}$ ). Недавние эксперименты в этой области позволили провести прямое измерение фононных спектров для конденсированных сред и, в частности, для кристаллических веществ [2] и жидкостей [3], а также измерить спектры неупругого рассеяния в газах [4]. Важным в этой области является мессбауэровское рассеяние СИ вперед [5].

Настоящая статья посвящена детальному теоретическому анализу НКМР СИ и выявляет ряд специфических свойств НКМР вперед, не исследовавшихся ранее [6]. Ниже основное внимание сконцентрировано на исследовании возможностей достижения условий фазового синхронизма (ФС) в НКМР СИ вперед и связи максимально достижимой интенсивности НКМР вперед в образцах конечной толщины со степенью отклонения от ФС. В частности, показано, что за счет НКМР максимальная интенсивность резонансной по энергии доли рассеянного СИ реализуется для толщин образцов существенно больших, чем длина поглощения мессбауэровских квантов. Это объясняется "накачкой" нерезонансных квантов СИ в мессбауэровскую линию. Выявлено также обусловленное когерентными эффектами некоторое смещение (на величину порядка ширины мессбауэровской линии) спектрального распределения резонансной доли НКМР в сторону более низких энергий по отношению к резонансной энергии.

**Основные уравнения.** Рассмотрим процессы НКМР в ходе распространения импульса СИ в образце, содержащем ядра мессбауэровского изотопа. Так как процесс

<sup>1)</sup> e-mail: bel@landau.ac.ru

мессбауэровского рассеяния осуществляется через две четко выраженные стадии, поглощение гамма-кванта ядром и последующее переизлучение кванта, то существуют три различных возможности для НКМР: 1) поглощение или рождение фонона только на стадии поглощения гамма-кванта, 2) поглощение или рождение фонона только на стадии переизлучения гамма-кванта, 3) поглощение или рождение фонона как на стадии поглощения, так и переизлучения гамма-кванта. Следуя терминологии статьи [6], будем называть эти возможности как НКМР1 – из нерезонансной компоненты СИ в резонансную, НКМР2 – из резонансной компоненты СИ в нерезонансную, НКМР3 – из нерезонансной компоненты СИ в резонансную.

В типичном мессбауэровском эксперименте с СИ продолжительность импульса СИ (порядка  $10^{-12}$  с) гораздо короче продолжительности процесса мессбауэровского рассеяния (порядка  $10^{-5} - 10^{-9}$  с), так что можно считать, что импульс СИ представляет из себя  $\delta$ -функцию во времени, распространяющуюся в образце с групповой скоростью импульса СИ. Рассматривая процессы НКМР1 и НКМР3, взаимодействие СИ с мессбауэровскими ядрами образца можно рассматривать как возмущение и поэтому электромагнитное поле в образце представить как сумму двух компонент  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1$ , где  $\mathbf{E}_0$  – невозмущенное поле СИ, а  $\mathbf{E}_1$  – возмущение, обусловленное взаимодействием СИ с мессбауэровскими ядрами. Уравнение для  $\mathbf{E}_1$  принимает вид

$$-\text{rotrot}\mathbf{E}_1 = c^{-2}(\epsilon_0 + \epsilon_1)\partial^2\mathbf{E}_1/\partial t^2 + c^{-2}\epsilon_1\partial^2\mathbf{E}_0/\partial t^2, \quad (1)$$

где  $\epsilon_0$  – диэлектрическая проницаемость в отсутствие ядерного взаимодействия и  $\epsilon_1$  – добавка к диэлектрической проницаемости, обусловленная ядерным взаимодействием. Явный вид  $\epsilon_1$  зависит от типа процесса из числа названных выше и определяется соответствующей амплитудой мессбауэровского рассеяния.

Если учесть, что импульс СИ может считаться  $\delta$ -функцией во времени, последнее слагаемое в правой части уравнения (1) может быть представлено в виде  $-(\omega_s/c)^2\epsilon_1\mathbf{E}_0(\omega_s, z)\delta(z - v_g t)$ , где  $\omega_s$  – частота СИ,  $v_g$  – групповая скорость импульса СИ и  $z$  – координата в направлении распространения импульса. Представляя решение уравнения (1) в форме  $\mathbf{E}_1 = \mathbf{E}^N \exp[i(kz - \omega t)]$ , для  $\mathbf{E}^N$  получим уравнение

$$\mathbf{E}^N[k^2 - (\epsilon_0 + \epsilon_1)(\omega/c)^2] = (\omega_s/c)^2\chi^N E_0\delta(\omega/v_g - k), \quad (2)$$

где  $\chi^N$  – аналог известной из нелинейной оптики нелинейной восприимчивости [1]. Из уравнения (2) следует условие

$$\omega/v_g \equiv k_p = k, \quad (3)$$

которое может рассматриваться как условие фазового синхронизма (ФС).

**Длина когерентности.** Рассмотрим НКМР в плоско-параллельной пластине, полагая, что направление распространения СИ перпендикулярно поверхности пластины. Согласно [6], решение уравнения (2) может быть представлено как сумма частного решения неоднородного уравнения и решения однородного уравнения. Коэффициент перед однородным решением в этой суперпозиции определяется из граничных условий, которые требуют, чтобы интенсивность НКМР на входной поверхности обращалась в нуль. В результате для амплитуды НКМР имеем:

$$\mathbf{E}_1 = (\omega_s/c)^2\chi^N E_0[k^2 - (\epsilon_0 + \epsilon_1)(\omega/c)^2]^{-1}\{\exp[i(k_p z - \omega t)] - \exp[i(kz - \omega t)]\}, \quad (4)$$

где  $k_p = \omega/v_g$ . Фигурные скобки в (4) пропорциональны  $\sin[(k - k_p)z/2]$ , так что возрастание интенсивности НКМР в образце ограничено длиной  $l_c = \pi(k - k_p)^{-1}$ ,

которая называется длиной когерентности. Если условие ФС (3) выполнено, длина когерентности расходится и амплитуда НКРМ на выходной поверхности увеличивается пропорционально толщине пластины. В реальной ситуации весьма существенно поглощение и именно оно лимитирует неограниченный рост интенсивности НКРМ с толщиной образца.

**Условия максимальной интенсивности НКРМ.** Рассмотрим случай НКРМ1 – рассеяние из нерезонансной компоненты в резонансную. В этом случае множитель  $(\epsilon_0 + \epsilon_1)$  в уравнениях (1), (2) принимает следующий вид:  $(\epsilon_0 + \epsilon_1) = 1 - \Delta\epsilon_{el} + \Delta\epsilon_M$ , где  $\Delta\epsilon_{el}$  и  $\Delta\epsilon_M$  являются электронным и мессбауэровским вкладами в диэлектрическую проницаемость. Величина  $\Delta\epsilon_M$ , относящаяся к мессбауэровскому взаимодействию, резонансным образом зависит от частоты и изменяет знак своей действительной части на резонансной частоте мессбауэровского перехода, что открывает возможность для удовлетворения условия ФС (3). Чтобы получить количественное описание соответствующей возможности используем выражения для  $\Delta\epsilon_{el}$  и  $\Delta\epsilon_M$ . Что касается электронного вклада, то выражение для него хорошо известно

$$\Delta\epsilon_{el} = (\omega_p/\omega)^2, \quad (5)$$

где  $\omega_p$  – плазменная частота для образца. Явный вид  $\Delta\epsilon_M$  зависит от характеристик мессбауэровского перехода (см., например, [1,6]) и будет представлен ниже в форме

$$\Delta\epsilon_M = -f\Gamma_i N(E_S - E_R + i\Gamma/2)^{-1}, \quad (6)$$

где  $f$  – фактор Лемба – Мессбауэра,  $\Gamma_i$  и  $\Gamma$  – радиационная и полная ширины мессбауэровского перехода,  $N$  зависит от характеристик мессбауэровского перехода [1],  $E_S$  и  $E_R$  – энергия СИ и резонансная энергии, соответственно. Теперь легко найти  $k_p$  и  $k$  для всех конкретных случаев, перечисленных выше. Например, для случая НКРМ1, рассеяния из нерезонансной компоненты в резонансную

$$k_p = (\omega/c)(\epsilon_{el})^{-1/2} = (\omega/c)(1 + \Delta\epsilon_{el}/2), \quad k = (\omega/c)(1 - \Delta\epsilon_{el}/2 + \Delta\epsilon_M/2), \quad (7)$$

и условие ФС (3) может быть представлено в виде

$$\text{Re}(\Delta\epsilon_{el} + \Delta\epsilon_M/2) = 0. \quad (8)$$

Из вида  $\Delta\epsilon_M$  [1] следует, что условие ФС для случая 1 может быть достигнуто для частоты, близкой к резонансной и оказывающейся несколько ниже ее. Предполагая, что условие (8) выполнено, из (4) можно найти выражение для толщины образца, соответствующей максимальной интенсивности резонансной компоненты НКРМ:

$$h_m = (1/\mu_{Mp}) \ln[(\mu_{Mp} + \mu_e)/\mu_e], \quad (9)$$

где  $\mu_e$  – коэффициент поглощения СИ (в пренебрежении ядерным взаимодействием) и  $\mu_{Mp}$  – коэффициент поглощения мессбауэровского излучения (в пренебрежении взаимодействием с электронами) на частоте, удовлетворяющей ФС.

Из (9) следует, что в типичной ситуации толщина образца  $h_m$ , соответствующая максимуму резонансной компоненты НКРМ, превосходит длину поглощения  $1/\mu_M$  (где  $\mu_M$  – значение коэффициента мессбауэровского поглощения в точном резонансе). Поэтому в случае 1, как это следует из (9), эффективно резонансная компонента НКРМ обладает большей проникающей способностью, чем обычное мессбауэровское излучение, и максимум ее интенсивности сдвинут в сторону низких частот.

Для случая 3 ФС требует условия  $\Delta\epsilon_{el} = 0$ , которое не может быть выполнено точно, и поэтому существуют биения и ограничения интенсивности как функции толщины образца даже в отсутствие поглощения. Теперь максимум интенсивности соответствует следующей толщине:

$$h_m = (1/\Delta k) \operatorname{arctg}(\Delta k/\mu_e), \quad (10)$$

где  $\Delta k = (\omega/c)\operatorname{Re}(\Delta\epsilon_{el})$ .

**Интенсивность резонансной компоненты НКМР.** Выражение для абсолютной интенсивности НКМР в образце конечной толщины может быть получено из выражения (4) взятием квадрата его модуля и интегрированием по частотам СИ. Соответствующий интервал интегрирования вокруг мессбауэровской резонансной частоты оценивается как  $2T_D$ , где  $T_D$  – дебаевская температура образца. Однако фактическое выполнение такого интегрирования затруднительно. Поэтому интенсивность резонансной компоненты НКМР оценим в простейшем предположении о рассеянии с участием фононов. Будем считать, что сечение такого рассеяния  $\sigma_{ph}$  не зависит от энергии фононов и постоянно в интервал интегрирования  $2T_D$  вокруг резонансной частоты. При этом для сечения рассеяния в резонансную компоненту с участием фононов получим

$$\sigma_{ph} = \sigma_0(\Gamma/2T_D)f(1-f), \quad (11)$$

где  $\sigma_0$  – максимальное сечение мессбауэровского упругого рассеяния. Так как типичное значение отношения  $\Gamma/2T_D$  очень мало (порядка  $10^{-6}$  для случая  $\text{Fe}^{57}$ ), то влияние этого канала рассеяния на поглощение СИ в образце пренебрежимо мало.

Учитывая сказанное, для интенсивности резонансной компоненты НКМР  $I_r$ , генерируемой в условиях фазового синхронизма (8), получим следующее уравнение, описывающее ее изменение с толщиной образца:

$$dI_r(x)/dx = f(\sigma_p/\sigma_0)(\mu_{ph})(\alpha + 1)^{-1}I_s(x) - (\mu_{Mp} + \mu_e)I_r(x), \quad (12)$$

где  $\sigma_p$  – значение сечения мессбауэровского поглощения на частоте фазового синхронизма,  $\alpha$  – коэффициент внутренней конверсии,  $I_s(x)$  – интенсивность СИ как функция глубины проникновения в образец и  $(\mu_{ph})^{-1}$  – длина поглощения СИ по отношению к ядерному поглощению с участием фононов.

Учитывая, что на входной поверхности образца интенсивность НКМР равна нулю, а также учитывая соотношение (11) для сечений процесса с участием и без участия фононов, для толщинной зависимости спектральной интенсивности резонансной компоненты НКМР интегральной по частоте СИ из (12) найдем:

$$I_r(x)_t = (\sigma_p/\sigma_0)f(1-f)(\alpha + 1)^{-1}I_s(0)(1 - \exp(-\mu_{Mp}x)) \exp(-\mu_e x), \quad (13)$$

где  $I_s(0)$  – спектральная плотность СИ на входной поверхности образца.

Максимум выражения (13) достигается на глубине, определяемой соотношением (9). Для этой толщины образца отношение числа квантов резонансной компоненты НКМР в энергетическом интервале порядка  $\Gamma$  к числу квантов в том же энергетическом интервале в исходном пучке СИ оценивается как

$$N_r/N_{sM} = f(1-f)(\alpha + 1)^{-1}. \quad (14)$$

Максимальное число резонансных квантов, которое может быть получено за счет резонансной компоненты НКМР, согласно (14), меньше, чем их число в исходном пучке СИ. Однако их число, отнесенное к числу резонансных квантов, проникающих через образец, может быть существенно больше единицы:

$$N_r(x)/N_M(x) = f(1-f)(\alpha+1)^{-1}(1-\exp(-\mu_{Mp}x))\exp(-\mu_e x + \mu_M x). \quad (15)$$

Отношение их числа к числу упруго резонансно рассеянных квантов оценивается

$$N_r(x)/N_{Ms}(x) = (1-f)f^{-1}(1-\exp(-\mu_{Mp}x))\exp(\mu_M x)/(1-\exp(-\mu_M x)), \quad (16)$$

отношение (16) при толщинах, больших чем  $(\mu_M)^{-1}$ , стремится к  $(1-f)f^{-1}\exp(\mu_M x)$ , то есть становится экспоненциально большим.

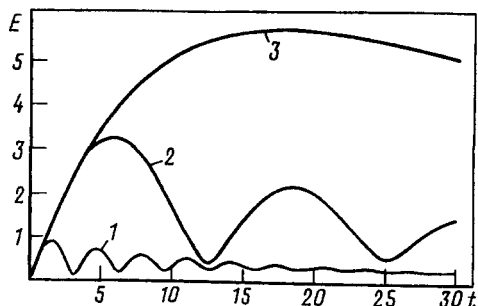


Рис.1. Зависимость амплитуды резонансной компоненты НКМР (произвольные единицы) от безразмерной толщины образца  $t = h(\omega/c)\text{Re}(\Delta\epsilon_{el})$  для различных отклонений частоты от резонансного значения: кривая 1 -  $\Delta\omega/\Gamma = 5$ ; кривая 2 -  $\Delta\omega/\Gamma = -10$ ; кривая 3 -  $\Delta\omega/\Gamma = -5$  - значения частоты, удовлетворяющей условиям ФС)

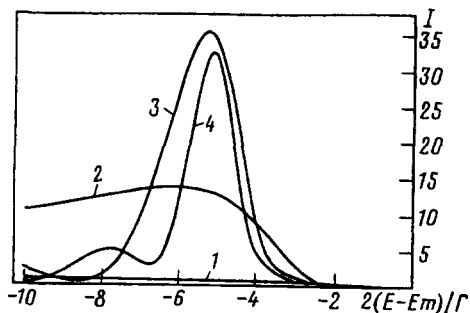


Рис.2. Спектральное распределение (произвольные единицы) интенсивности резонансной компоненты НКМР в зависимости от безразмерной толщины  $t = h(\omega/c)\text{Re}(\Delta\epsilon_{el})$ : кривая 1 -  $t = 1$ ; кривая 2 -  $t = 5$ ; кривая 3 -  $t = 15$ ; кривая 4 -  $t = 25$

**Результаты расчетов.** В этом разделе результаты общего анализа иллюстрируются расчетами для конкретных параметров задачи. Соответствующие параметры, использованные в вычислениях, приблизительно соответствуют случаю взаимодействия СИ с образцом железа, обогащенным  $^{57}\text{Fe}$  до существенно высокой степени. Соответствующая энергия мессбауэровского перехода равна 14.4 кэВ.

В вычислениях использовались следующие значения других параметров:  $\text{Re}(\Delta\epsilon_{el}) = 10^{-5}$ ,  $\text{Im}(\Delta\epsilon_{el}) = 2 \cdot 10^{-7}$ ,  $\text{Max Re}(\Delta\epsilon_M) = 10 \text{Re}(\Delta\epsilon_{el})$ .

Как упоминалось выше, для случая НКМР1 близость к условиям ФС (3), (8) зависит от сдвига частоты относительно мессбауэровского резонанса. На рис.1 представлены зависимости амплитуды резонансной компоненты НКМР от глубины ее проникновения в образец для нескольких значений отклонения частоты от ее резонансного значения.

Поскольку спектральное распределение резонансной компоненты НКМР изменяется в процессе его распространения в образце, на рис.2 представлены спектральные распределения резонансной компоненты НКМР на выходной поверхности для образцов различной толщины.

Рис.3 позволяет сравнить обычное затухание интенсивности мессбауэровского излучения в образце с поведением амплитуд различных компонент НКМР.

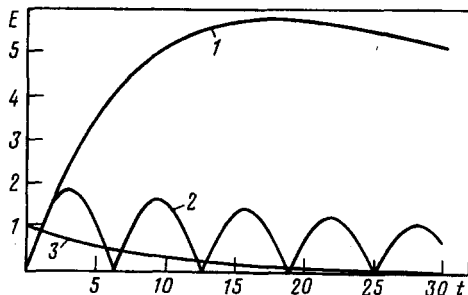


Рис.3. Зависимость амплитуды резонансной компоненты НКРМ (произвольные единицы) (кривая 1), нерезонансной компоненты НКРМ (2) и обычного мессбауэровского излучения, падающего на образец, (3) от безразмерной толщины образца  $t = h(\omega/c)\text{Re}(\Delta\epsilon_{ei})$  (случаи 1 и 3 относятся к одной и той же частоте  $\Delta\omega/\Gamma = -5$ , удовлетворяющей условиям ФС)

**Обсуждение результатов.** Как показывают результаты анализа, НКРМ вперед проявляет много особенностей. Наиболее яркие проявления специфики НКРМ вперед – это эффективное увеличение проникающей способности резонансной компоненты НКРМ и сдвиг ее спектрального распределения в сторону низких частот от резонансной частоты. Амплитуда НКРМ вперед для частот, близких к ФС, возрастала бы линейно с толщиной образца в отсутствие нерезонансного поглощения. Однако из-за наличия нерезонансного поглощения этот линейный рост ограничивается электронной длиной поглощения  $1/\mu_e$ . Физика возрастания проникающей способности резонансной компоненты НКРМ связана с накачкой нерезонансной компоненты СИ в резонансную.

Нерезонансная компонента НКРМ испытывает биения с толщиной образца, а ее максимум достигается для толщины, совпадающей с соответствующей длиной когерентности. В целом же нерезонансные компоненты НКРМ размазаны по энергии в интервале порядка  $2T_D$ , и их спектральная плотность оказывается гораздо ниже соответствующей спектральной плотности в исходном пучке СИ.

Существует несколько возможностей для экспериментального наблюдения обсуждавшихся свойств НКРМ вперед. Увеличение проникающей способности резонансной компоненты НКРМ может быть наблюденно прямым путем по наблюдению НКРМ вперед для образцов, толщина которых превосходит мессбауэровскую длину поглощения  $1/\mu_M$ . Трансформация спектрального распределения резонансной компоненты НКРМ с толщиной образца может быть наблюденна методом традиционной мессбауэровской спектроскопии в сочетании с техникой временной задержки. Очевидный способ изменять эффективную толщину образца – это изменение угла падения пучка.

Настоящая работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований 96-02-18812 и грантом Российской Государственной научной программы "Фундаментальная метрология по проекту Синхротронное излучение".

1. В.А.Беляков, *Дифракционная оптика периодических сред сложной структуры*, М.: Наука, 1988 (V.A.Belyakov, *Diffraction Optics of Complex-Structured Periodic Media*, 1992. Chpt 10, New York: Springer, p.333, дополненный перевод русского издания).
2. M.Seto, Y.Yoda, S.Kikuta et al, *Phys.Rev. Lett.* **74**, 3828 (1995).
3. X.W.Zhang, Y.Yoda, M.Seto et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, L330 (1995).
4. A.I.Chumakov, A.Q.R.Baron, R.Rüffer et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4258 (1996); A.I.Chumakov, R.Rüffer, A.Q.R.Baron et al., *Phys. Rev. B* **54**, R9596 (1996).
5. J.B.Hastings, D.P.Siddons, U. van Bürck et al., *Phys. Rev. Lett.* **66**, 770 (1991).
6. В.А.Беляков, *ЖЭТФ* **108**, 741 (1995).