

ЯДЕРНАЯ РЕЗОНАНСНАЯ ДИФРАКЦИЯ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ: ИГРА СОЧЕТАНИЙ АНИЗОТРОПИИ ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ ЯДЕР И АСИММЕТРИИ ДИФРАКЦИОННОЙ ГЕОМЕТРИИ

Г. В. Смирнов*

Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 января 2022 г.,
после переработки 18 марта 2022 г.
Принята к публикации 6 апреля 2022 г.

Рассматриваются возможности дальнейшего развития источников синхротронного мёссбауэровского излучения (СМИ), физические принципы и характеристики которых описаны в работах [1–3]. Чисто ядерная дифракция синхротронного излучения в резонансной ядерной матрице, в данном случае в кристалле бората железа, $^{57}\text{FeBO}_3$, является физической основой для генерации СМИ. При когерентной флюоресценции ядер, возбужденных синхротронным излучением, формируется остро направленный пучок поляризованного резонансного гамма-излучения, которое находит применение в уникальных областях мёссбауэровской спектроскопии. В настоящей работе проведено численное моделирование процессов чисто ядерной дифракции гамма-излучения в кристалле бората железа около точки Нееля, вблизи которой реализуется сильная анизотропия ядерной поляризуемости кристалла. Полученные результаты моделирования раскрыли возможности существенно поднять (при данных характеристиках ускорительных центров) интенсивность источников СМИ за счет использования асимметричных условий дифракции Брэгга и подходящей поляризации излучения возбуждающего ядра. Результаты работы могут служить развитию спектроскопии высокого разрешения на синхротронных источниках.

DOI: 10.31857/S0044451022080016
EDN: EFIQWW

1. ВВЕДЕНИЕ

В 1997 году на синхротронном источнике ESRF была показана возможность генерации непрерывного когерентного мёссбауэровского излучения ядер ^{57}Fe с энергией $E = 14.41$ кэВ [1]. Физическая основа и принципы генерации излучения изложены в работах [2, 3]. В первом эксперименте интенсивность когерентного гамма-излучения была невелика и составляла всего 100 квантов/с. В дальнейшем в ускорительных центрах Spring8 и ESRF [4–24] интенсивность была доведена до уровня 10^4 – $3 \cdot 10^4$ квантов/с, главным образом, за счет увеличения интенсивности синхротронного излучения возбуждающего ядра. Уникальные свойства генерируемого гамма-излучения: отсутствие в спектре излучения нерезонансной компоненты, высокая направ-

ленность пучка $\Delta\theta = 10$ – 20 мкрад, малое сечение пучка 10 мкм и высокая степень поляризации излучения около 100% — нашли успешное применение в мёссбауэровской спектроскопии при экстремальных условиях, в которых традиционные источники оказываются непригодными или малоэффективными [5–16].

В основе генерации СМИ лежит возможность реализации чисто ядерной дифракции гамма-лучей в кристаллах с антиферромагнитным упорядочением локальных магнитных полей, впервые обнаруженная в 1969 году [17]. В первом эксперименте использовался антиферромагнитный кристалл гематита Fe_2O_3 . Однако в дальнейшем предпочтение было отдано кристаллу бората железа FeBO_3 , имеющему целый ряд преимуществ перед гематитом для исследования чисто ядерной дифракции [18]. Отраженное гамма-излучение при чисто ядерной дифракции оказывается полностью безотдачным. Однако в силу сверхтонкого расщепления ядерных

* E-mail: g.smirnov@gmx.net

уровней в кристалле спектр резонансного излучения содержит несколько частотных компонент. Последнее обстоятельство практически закрывает возможность использования подобного излучения для целей мёссбауэровской спектроскопии. Но, как показали дальнейшие исследования, уникальные природные свойства чисто ядерной дифракции в кристалле бората железа FeVO_3 позволяют получить при температуре вблизи точки Нееля резонансное гамма-излучение, в спектре которого содержится только одна линия [19, 20]. Раскрытые возможности и были в дальнейшем успешно использованы для генерации стационарного резонансного гамма-излучения на синхротронных источниках.

В недавно опубликованной работе [21] было показано, что в условиях сверхтонкого взаимодействия ядра ^{57}Fe с внутрикристаллическими полями в борате железа большую роль в когерентном рассеянии гамма-лучей может играть интерференция волн излучения в спиновом пространстве. В частности, при определенных условиях эта разновидность интерференции приводит к сильной анизотропии рассеяния уже на одиночном ядре в зависимости от направления на нем магнитного поля. В настоящей работе анализируется роль интерференции в спиновом пространстве при чисто ядерной дифракции гамма-лучей в кристалле бората железа. Исследуется анизотропия ядерной восприимчивости для разных поляризаций падающего излучения. В модельных экспериментах изучаются угловые и энергетические зависимости отражательной способности кристалла в окрестности брэгговского угла при разной асимметрии дифракционной геометрии.

В проведенных исследованиях преследуется цель найти физические условия чисто ядерной дифракции, в которых можно было бы получить максимально возможную интенсивность когерентной флюоресценции ядер ^{57}Fe при данной интенсивности возбуждающего синхротронного излучения.

2. ОСОБЕННОСТИ ЧИСТО ЯДЕРНОЙ ДИФРАКЦИИ В КРИСТАЛЛЕ БОРАТА ЖЕЛЕЗА

После импульсного возбуждения долгоживущего изомерного состояния ядер ^{57}Fe синхротронным пучком наблюдается задержанное свечение ядерной мишени с испусканием флюоресцентного гамма-излучения. В общем случае флюоресцентное гамма-излучение распространяется в телесном угле 4π . Но при выполнении условий Брэгга для падающего пучка возникает так называемая когерентная ядер-

ная резонансная флюоресценция, при которой гамма-кванты испускаются только в определенных направлениях [16, 22, 23]. При чисто ядерной дифракции кристалл светится, испуская в избранных направлениях кванты с энергией 14.41 кэВ на протяжении всего времени, пока возбужденное состояние ядер подпитывается синхротронными импульсами. Испускаемое ядрами когерентное гамма-излучение мы называем синхротронным мёссбауэровским излучением (СМИ) [1–3, 24]. СМИ обладает уникальными свойствами: оно полностью безотдачное, остро направленное и поляризованное.

Существенной особенностью возбужденных ядерных состояний в кристалле бората железа является то обстоятельство, что они оказываются смешанными по проекции спина. Такое положение объясняется сверхтонким взаимодействием ядра ^{57}Fe с внутрикристаллическими полями в этом кристалле. Наряду с локальным магнитным полем на ядро действует электрическое поле, градиент которого ортогонален магнитному. Комбинированное взаимодействие ядра с внутрикристаллическими полями приводит к тому, что энергетический уровень, отвечающий возбужденному состоянию, расщепляется на четыре подуровня, причем на каждом из них состояние ядра оказывается суперпозицией двух состояний с разными проекциями спина ядра на ось квантования, ориентированную по локальному магнитному полю [2, 3]. Как было показано в работе [21], перечисленные особенности играют существенную роль в формировании спектра флюоресцентного гамма-излучения.

При большом сверхтонком расщеплении ядерных уровней, которое наблюдается при комнатной температуре, спектр излучения содержит четыре далеко отстоящие друг от друга линии. Очевидно, это обстоятельство делает флюоресцентное гамма-излучение крайне неудобным для спектроскопических исследований. К счастью природа дает выход из этого положения. Такая возможность опять же связана с уникальными свойствами кристалла бората железа. Если кристалл нагреть выше температуры магнитного фазового перехода — точки Нееля, $T_N \sim 75.3^\circ$, то когерентная ядерная флюоресценция исчезает в силу деструктивной интерференции рассеянных ядрами волн. Однако после приложенного к кристаллу небольшого магнитного поля, порядка 10–100 Э, магнитное сверхтонкое поле восстанавливается, а вместе с ним возобновляется и когерентная ядерная флюоресценция [19, 20]. В этих условиях основной вклад в испускаемое излучение дают два ядерных перехода, которым в мёссбауэров-

ском спектре бората железа соответствуют третий и шестой резонансы [2, 3]. В частности, при восстановленном локальном магнитном поле 2 кЭ третья и шестая резонансные линии находятся на расстоянии не более ширины ядерного уровня, т.е. существенно перекрываются, образуя псевдоодиночный резонанс. В этих условиях спектр гамма-излучения имеет вид одиночной линии [19, 20], что полностью отвечает требованиям мёссбауэровской спектроскопии.

При двухволновой дифракции в кристалле существуют два направления, в которых может распространяться излучение. Одно из них лежит близко к направлению падающей волны, а второе составляет с первым угол, равный $2\theta_B$, где θ_B — угол Брэгга. Обозначим эти направления цифрами 0 и 1. В достаточно толстом кристалле происходит многократное перерассеяние распространяющихся волн из одного направления в другое: $0 \rightarrow 0$, $0 \rightarrow 1$, $1 \rightarrow 0$, $1 \rightarrow 1$, реализуются условия динамической дифракции. При этом формируется самосогласованное состояние электромагнитного поля ядерного излучения и возбуждаемых этим полем ядерных токов.

В случае линейной поляризации падающего излучения особенностью чисто ядерной дифракции в кристалле бората железа является переход поляризованного излучения из одного состояния в другое в процессе отражении из направления 0 в направление 1. Падающая π -волна при возбуждении $M = \pm 1$ ядерных переходов превращается в отраженную σ -волну и наоборот. Эта особенность обусловлена антиферромагнитным упорядочением магнитных полей на ядрах железа в элементарной ячейке кристалла. Поворот плоскости поляризации происходит потому, что спины двух ядер, входящих в элементарную ячейку кристалла, оказываются противоположно ориентированными [2]. По этой причине при соответствующей частоте падающего излучения в одном из ядер возбуждается переход $M = +1$, а в другом $M = -1$. Интерференция эллиптически право- и левополяризованных волн, испускаемых ядрами элементарной ячейки, дает линейно-поляризованную волну, поляризация которой ортогональна поляризации падающей.

3. ИГРА СОЧЕТАНИЙ АНИЗОТРОПИИ ВОСПРИИМЧИВОСТИ ЯДЕР И АСИММЕТРИИ ДИФРАКЦИОННОЙ ГЕОМЕТРИИ

Результатом упомянутого выше смешивания ядерных состояний и антипараллельного упоря-

дочения ядерных спинов оказывается сильное различие ядерной восприимчивости и, следовательно, амплитуд рассеяния поляризованного излучения в каналах $0 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 1$, т.е. своеобразная анизотропия рассеяния. Возникает вопрос, может ли упомянутая анизотропия сказываться на отражательной способности кристалла. Остановимся на этом вопросе подробнее. Отражательная способность кристалла определяется следующим выражением [25]:

$$Q = |R|^2 \frac{1}{|\beta|}, \quad (1)$$

где R представляет коэффициент отражения, а β — фактор асимметрии отражения, $\beta = -\sin \theta_0 / \sin \theta_1$, где θ_0 — угол скольжения падающего на кристалл пучка, а θ_1 — угол скольжения отраженного пучка. Для кристалла полубесконечного по толщине коэффициент отражения имеет вид

$$R = -\frac{\beta \tilde{\eta}_{10}}{2\varepsilon_0^{(1)} - \tilde{\eta}_{00}}. \quad (2)$$

В последнее выражение входят параметры: $\tilde{\eta}_{00}$ и $\tilde{\eta}_{10}$ — элементы матрицы ядерной и электронной восприимчивостей кристалла, пропорциональные амплитуде рассеяния [2, 3], и $\varepsilon_0^{(1)}$ — малая комплексная добавка к рефракционному индексу, которая определяется следующим выражением:

$$\varepsilon_0^{(1)} = \frac{1}{4} \left\{ \tilde{\eta}_{00} + \beta \tilde{\eta}_{11} - \alpha \beta - \sqrt{(\tilde{\eta}_{00} - \beta \tilde{\eta}_{11} + \alpha \beta)^2 + 4\beta \tilde{\eta}_{01} \tilde{\eta}_{10}} \right\}, \quad (3)$$

куда помимо восприимчивостей кристалла входит угловой параметр α , прямо связанный с отклонением от угла Брэгга: $\theta - \theta_B$. Введем обозначение Z для знаменателя в уравнении (2) и запишем знаменатель с учетом уравнения (3):

$$Z = \frac{1}{2} \left\{ -\tilde{\eta}_{00} + \beta \tilde{\eta}_{11} - \alpha \beta - \sqrt{(\tilde{\eta}_{00} - \beta \tilde{\eta}_{11} + \alpha \beta)^2 + 4\beta \tilde{\eta}_{01} \tilde{\eta}_{10}} \right\}. \quad (4)$$

Поскольку при чисто ядерной дифракции электроны кристалла не участвуют в дифракционном процессе, мы выделим ядерную часть восприимчивости. Упомянутая выше анизотропия проявляется в том, что элементы матрицы ядерной восприимчивости η_{00} и η_{11} могут сильно различаться по величине (об этом пойдет речь ниже). При поле 2 кЭ

один элемент доминирует над другим. Так, для падающей π -поляризованной волны будет справедливо $|\eta_{00}^{\pi\pi}| \ll |\eta_{11}^{\sigma\sigma}|$, т. е. доминирует канал рассеяния $1 \rightarrow 1$, а для падающей σ -поляризованной волны будет справедливо $|\eta_{00}^{\sigma\sigma}| \gg |\eta_{11}^{\pi\pi}|$ и доминирует канал рассеяния $0 \rightarrow 0$. При этом $\eta_{00}^{\pi\pi} = \eta_{11}^{\pi\pi}$ и $\eta_{00}^{\sigma\sigma} = \eta_{11}^{\sigma\sigma}$ (заметим, что при поле на ядрах 330 кЭ, имеющем место при комнатной температуре, справедливо $\eta_{00}^{\pi\pi} \approx \eta_{11}^{\sigma\sigma}$ и $\eta_{00}^{\sigma\sigma} \approx \eta_{11}^{\pi\pi}$, т. е. анизотропия рассеяния отсутствует). Пренебрегая малой величиной восприимчивости, получим приблизительно для знаменателя коэффициента отражения в случае падающей π -волны:

$$Z = \frac{1}{2} \left\{ \beta\eta_{11}^{\sigma\sigma} - \alpha\beta - \sqrt{(-\beta\eta_{11}^{\sigma\sigma} + \alpha\beta)^2 + 4\beta\eta_{01}^{\pi\sigma}\eta_{10}^{\sigma\pi}} \right\}, \quad (5)$$

и в случае падающей σ -волны:

$$Z = \frac{1}{2} \left\{ -\eta_{00}^{\sigma\sigma} - \alpha\beta - \sqrt{(\eta_{00}^{\sigma\sigma} + \alpha\beta)^2 + 4\beta\eta_{01}^{\sigma\pi}\eta_{10}^{\pi\sigma}} \right\}. \quad (6)$$

Легко увидеть, что в симметричной геометрии дифракции, когда $\beta = -1$, оба выражения идентичны и, следовательно, отражательная способность имеет одинаковую величину при всех углах для разных поляризаций падающей волны, независимо от анизотропии. В случае асимметричной геометрии, $\beta \neq -1$, это положение нарушается и Q уже зависит от того, какой является поляризация падающей волны, формулы (5), (6). В следующем разделе приведены результаты расчетов, которые подтверждают этот вывод.

3.1. Ландшафт интенсивности отражения

Сила дифракционного отражения гамма-лучей от ядерной решетки кристалла зависит не только от угла падения лучей в окрестности брэгговского угла, как в случае рентгеновских лучей, но и от энергии излучения по отношению к ядерному резонансу. Соответственно отражательная способность кристалла имеет вид поверхности сложной формы, возвышающейся над плоскостью на нулевом уровне в координатах угол–энергия. До последнего времени для получения синхротронного мёссбауэровского излучения использовались отражения (111) и (333) в кристалле бората железа (отражения бората железа даны в ромбоэдрической системе координат). Плоскости (111) выходят на поверхность

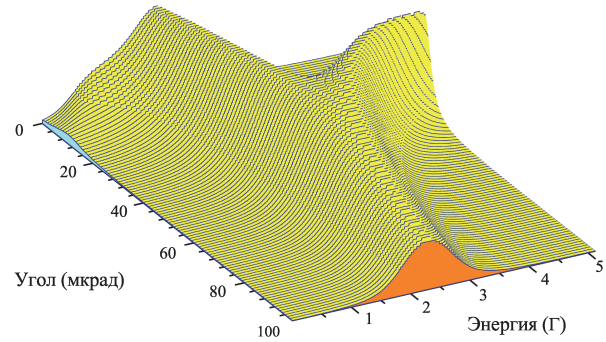


Рис. 1. Ландшафт отражательной способности Q кристалла $^{57}\text{FeVO}_3$ при поле на ядрах 2 кЭ для симметричного отражения (333) в окрестности брэгговского угла и в области ядерного резонанса. Энергетическая шкала охватывает область 5Г, где Г — естественная ширина энергетического уровня в первом возбужденном состоянии ядра ^{57}Fe . Угловая шкала охватывает интервал 100 мкрад

пластинчатого кристалла, поэтому упомянутые отражения относятся к симметричным. На рис. 1 показан ландшафт отражательной способности кристалла для отражения (333) в области ядерного резонанса вблизи температуры Нееля и в окрестности брэгговского угла. Начало отсчета на энергетической шкале соответствует положению резонанса без учета сверхтонкого взаимодействия. На угловой шкале оно соответствует положению брэгговского максимума без учета преломления излучения за счет его взаимодействия с электронами.

Ландшафт отражательной способности формируется в результате многопутевой интерференции гамма-излучения в каждом из открытых для его рассеяния пространств: геометрическом, энергетическом и спиновом [3, 21]. Поверхность отражательной способности Q имеет достаточно сложную форму. Сечение поверхности при заданном угле падения лучей на кристалл представляет собой энергетическую зависимость силы отражения в области ядерного резонанса при данном угле падения. Например, при угле падения 100 мкрад сечение имеет форму одиночного максимума (на рис. 1 срез оранжевого цвета).

Поскольку падающее излучение имеет конечную расходимость, необходимо интегрировать функцию отражения Q по углу с учетом углового распределения падающего излучения. В результате получим зависимость, которая характеризует энергетический спектр отраженного излучения:

$$\hat{Q}(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} dx F(x, x_p) \cdot Q(x, E), \quad (7)$$

Таблица 1. Матрицы ядерной восприимчивости кристалла $^{57}\text{FeVO}_3$ для симметричного отражения (333)

Ядерный резонанс	1	3	4	6
330 кЭ $\beta = -1$, π -поляризованное излучение на входе				
Положение в ед. Г	-53.78	-9.45	7.50	55.73
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -22.41 & 22.58i \\ -22.58i & -22.74 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.81 & -7.50i \\ 7.50i & -8.25 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.89 & 7.50i \\ -7.50i & -8.17 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -22.50 & -22.59i \\ 22.59i & -22.67 \end{Bmatrix}$
2 кЭ $\beta = -1$, π -поляризованное излучение на входе				
Положение в ед. Г	-2.08	1.70	-1.84	2.22
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.85i \\ -0.85i & -22.59 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & 14.23i \\ -14.23i & -29.04 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.77i \\ -0.77i & -21.04 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & -15.85i \\ 15.85i & -29.04 \end{Bmatrix}$
$\beta = -0.25$, π -поляризованное излучение на входе				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.80i \\ -0.80i & -20.00 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & 13.39i \\ -13.39i & -25.71 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.72i \\ -0.72i & -18.63 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & -14.91i \\ 14.91i & -25.72 \end{Bmatrix}$
$\beta = -0.25$, σ -поляризованное излучение на входе				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\sigma\sigma} & \eta_{01}^{\sigma\pi} \\ \eta_{10}^{\pi\sigma} & \eta_{11}^{\pi\pi} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -24.06 & -0.88i \\ 0.88i & -0.03 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -30.92 & -14.68i \\ 14.68i & -6.97 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -22.40 & -0.79i \\ 0.79i & -0.03 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -30.93 & 16.35i \\ -16.35i & -8.65 \end{Bmatrix}$
$\beta = -4.0$, π -поляризованное излучение на входе				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.88i \\ -0.88i & -24.06 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & 14.68i \\ -14.68i & -30.92 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.79i \\ -0.79i & -22.40 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & -16.35i \\ 16.35i & -30.93 \end{Bmatrix}$
$\beta = -4.0$, σ -поляризованное излучение на входе				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\sigma\sigma} & \eta_{01}^{\sigma\pi} \\ \eta_{10}^{\pi\sigma} & \eta_{11}^{\pi\pi} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -20.01 & -0.80i \\ 0.80i & -0.03 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -25.71 & -13.39i \\ 13.39i & -6.97 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -18.63 & -0.72i \\ 0.72i & -0.03 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -25.72 & 14.91i \\ -14.91i & -8.65 \end{Bmatrix}$

здесь F представляет функцию углового распределения падающего пучка, $x = (\theta - \theta_B)$, x_p — фиксированное угловое положение центра распределения пучка. В случае распределения Гаусса она имеет вид

$$F(x, x_p) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left\{-\frac{(x - x_p)^2}{2\sigma^2}\right\}, \quad (8)$$

где σ обозначает стандартное отклонение.

Угол падения синхротронного излучения возбуждающего ядра должен быть выбран, исходя из соображений получения оптимальных интенсивности и формы синхротронного мёссбауэровского излучения. Как показывает ландшафт отражательной способности кристалла, рис. 1, оптимальная угловая зона в симметричной геометрии находится в интервале от 60 до 100 мкрад. В данном интервале сечение поверхности имеет форму, близкую к одиночному резонансному максимуму.

3.2. Угловые зависимости отражений

Угловую зависимость отражательной силы кристалла получим путем интегрирования по энергии функции, представляющей собой сечение ландшафта при данном угле x . При этом будем учитывать тот факт, что интенсивность синхротронного излучения является константой в энергетическом интервале ядерного резонанса. И тогда для угловой функции отражения синхротронного излучения получим

$$\hat{Q}(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} dE Q(x, E). \quad (9)$$

Угловая зависимость интенсивности генерируемого гамма-излучения пропорциональна $\hat{Q}(x)$. Чтобы проверить игру разных сочетаний анизотропии ядерной восприимчивости и асимметрии дифракции проведем расчеты отражательной способности кри-

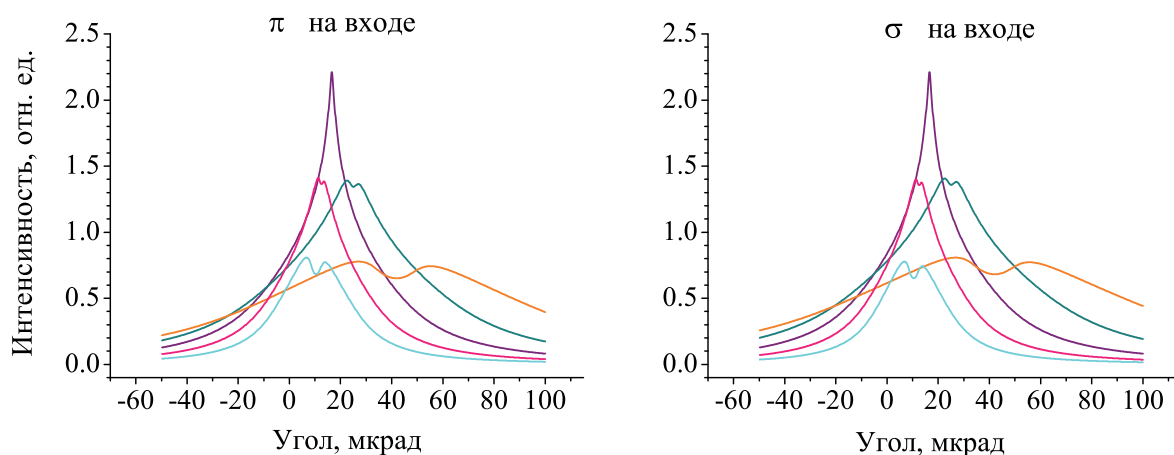


Рис. 2. Угловые зависимости интенсивности чисто ядерной дифракции синхротронного излучения от кристалла $^{57}\text{FeBO}_3$ в отражении (333) при локальном магнитном поле на ядрах 330 кЭ при комнатной температуре и различных факторах асимметрии. По горизонтальной оси отложен угол отклонения от брэгговского положения кристалла. Интеграл по энергии взят в окрестности шестого резонанса. Правая и левая панели показывают зависимости соответственно для π - и σ -поляризации падающего излучения. Симметричному случаю дифракции, $b = -1$, соответствуют кривые фиолетового цвета, асимметричным случаям: $\beta = -0.5$ — кривые темно-голубого цвета, $\beta = -0.25$ — оранжевого, $\beta = -2.0$ — розового, $\beta = -4.0$ — голубого

сталла бората железа при чисто ядерной дифракции с использованием отражения (333). Будем предполагать, что плоскости (111) могут быть отклонены от поверхности кристалла на произвольный угол вокруг нормали к плоскости рассеяния так, чтобы можно было бы сравнить отражательную способность кристалла в геометрии скользящего падения, при которой угол скольжения падающего луча меньше угла скольжения отраженного луча с отражательной способностью в геометрии крутого падения, при которой соотношение скользящих углов обратное. В табл. 1 приведены результаты расчетов матриц ядерной восприимчивости для отражения (333) при разных температурах и факторах асимметрии для π - и σ -поляризованного падающего излучения (в табл. 1 и далее термину «излучение на входе» соответствует термин «падающее излучение»). Величины восприимчивости даны для резонансных значений энергии возбуждающего излучения.

Матрицы рассчитаны для четырех ядерных резонансов, которые разрешены при чисто ядерной дифракции в кристалле бората железа. Резонансы соответствуют 1, 3, 4 и 6 линиям в мессбауэровском спектре ядра ^{57}Fe при магнитном расщеплении ядерных уровней. Поскольку локальные магнитные поля на двух ядрах в элементарной ячейке кристалла антипараллельны, то этим резонансам

на разных ядрах соответствуют переходы, в которых магнитное квантовое число излучения имеет противоположные знаки. Прежде всего рассмотрим ситуацию, в которой анизотропия рассеяния отсутствует. Такая ситуация реализуется при комнатной температуре. Поле на ядрах при этой температуре равно приблизительно 330 кЭ. За счет сверхтонкого расщепления ядерных уровней энергии при таком большом поле ядерные резонансы хорошо разделены, минимальное расстояние между ними составляет 17Г. При этом для всех резонансов матричные элементы восприимчивости $\eta_{00}^{\pi\pi} \approx \eta_{11}^{\sigma\sigma}$, $\eta_{00}^{\sigma\sigma} \approx \eta_{11}^{\pi\pi}$ (близкие соотношения при поле 330 кЭ сохраняются и в асимметричной геометрии дифракции). На рис. 2 сравниваются угловые зависимости интенсивности отражения для 6-го ядерного резонанса. Интегрирование по энергии проведено в окрестности этого резонанса в интервале $55.73\text{Г} \pm 1.5\text{Г}$. Сравняются угловые зависимости в симметричной и асимметричной геометриях при скользящем падении $|\beta| < 1$ и при крутом падении $|\beta| > 1$. Как видно, при скользящем падении с ростом асимметрии угловая зависимость значительно уширяется и смещается в сторону больших углов. Напротив, с ростом асимметрии при крутом падении зависимость сужается и смещается в сторону меньших углов. И, что важно отметить, в отсутствие анизотропии рассеяния при комнатной температуре максимальная

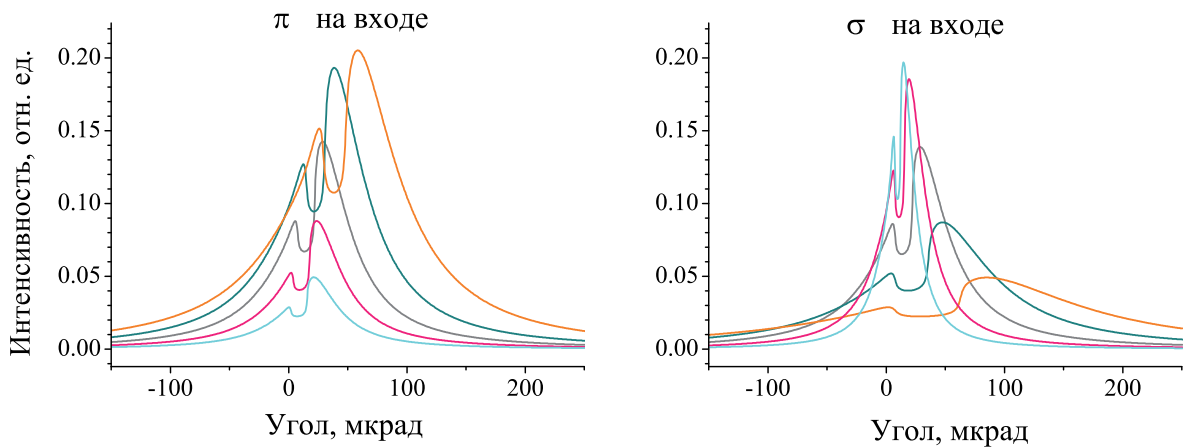


Рис. 3. Угловые зависимости интенсивности чисто ядерной дифракции синхротронного излучения от кристалла $^{57}\text{FeBO}_3$ в отражении (333) при локальном магнитном поле на ядрах 2 кЭ вблизи температуры Нееля и различных факторах асимметрии. По горизонтальной оси отложен угол отклонения от брэгговского положения кристалла. Интеграл по энергии взят в резонансной области от -7Γ до 10Γ . Симметричному случаю дифракции, $\beta = -1$, соответствуют кривые фиолетового цвета, асимметричным случаям: $\beta = -0.5$ — кривые темно-голубого цвета, $\beta = -0.25$ — оранжевого, $\beta = -2.0$ — розового, $\beta = -4.0$ — голубого

интенсивность отражения симметрично уменьшается с отходом от геометрии с $|\beta| = 1$.

Обратимся теперь к ситуации, в которой становится существенной анизотропия рассеяния. Такая ситуация реализуется в окрестности точки Нееля, где магнитное и электрическое квадрупольное расщепления ядерных уровней в борате железа становятся сравнимыми по величине. Матрицы восприимчивости для этих условий представлены в табл. 1 (напряженность магнитного поля на ядрах принята равной 2 кЭ вблизи температуры Нееля). Как следует из таблицы, в рассматриваемых условиях матрицы ядерной восприимчивости, а следовательно, и амплитуды рассеяния для π - и σ -поляризаций падающего излучения показывают существенную анизотропию в направлениях рассеяния $0 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 1$. Основной вклад в картину дифракции дают 3-й и 6-й резонансы (отмеченные жирным шрифтом). Они находятся друг от друга на расстоянии всего 0.5Г. Матричные элементы для каналов рассеяния 00 и 11 соотносятся следующим образом:

$$\eta_{00}^{\pi\pi} / \eta_{11}^{\sigma\sigma} \approx 0.25$$

и

$$\eta_{00}^{\sigma\sigma} / \eta_{11}^{\pi\pi} \approx 4.$$

соответственно для скользящего $\beta = 0.25$ и для крутого $\beta = 4.0$ падения лучей на кристалл. Таким образом, имеет место сильная анизотропия рассеяния

по направлениям $0 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 1$ для π - и σ -поляризаций излучения. На рис. 3 показаны угловые зависимости интенсивности отражения для разных факторов асимметрии и разных поляризаций падающего излучения при поле 2 кЭ.

При отходе в сторону скользящего падения лучей на кристалл угловые кривые по-прежнему уширяются и сдвигаются в сторону положительных угловых смещений, а при отходе в сторону крутого падения сужаются и сдвигаются в сторону отрицательных угловых смещений. Однако в отличие от случая рассеяния при комнатной температуре, где анизотропия ядерной восприимчивости отсутствует, теперь наблюдается сильная асимметрия в максимальной интенсивности отражения при скользящем и крутом падении излучения. Причем асимметрия в интенсивности имеет разную направленность для π - и σ -поляризации падающего излучения. Для π -поляризованного излучения отражательная способность растет при смещении в сторону скользящего падения и снижается в сторону крутого. Для σ -поляризованного излучения отражательная способность, напротив, снижается при смещении в сторону скользящего падения и растет в сторону крутого. Если говорить о выигрыше в интенсивности излучения, то в случае π -поляризации предпочтительным оказывается скользящее падение, а в случае σ -поляризации крутое падение лучей, однако при

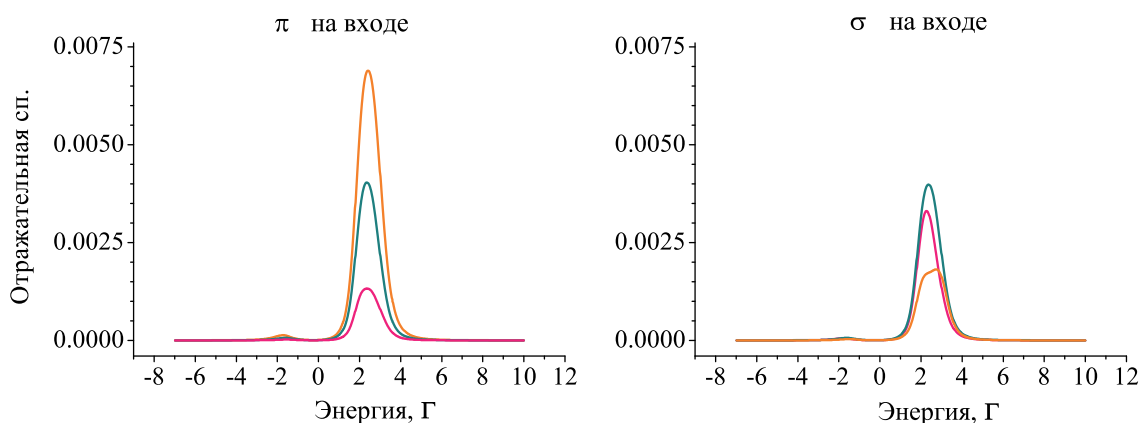


Рис. 4. Спектры гамма-излучения, испускаемого кристаллом $^{57}\text{FeVO}_3$ при возбуждении ядер железа синхротронным излучением, падающего на кристалл в окрестности брэгговского отражения (333) на правых склонах угловых кривых. Локальное магнитное поле на ядрах равно 2 кЭ. Спектры в симметричной геометрии дифракции $\beta = -1.0$ отображены линиями темно-голубого цвета, при скользящем падении $\beta = -0.25$ — линиями оранжевого цвета и при крутом падении $\beta = -4.0$ — линиями розового цвета

этом важно отметить, что угловая область сильного отражения для первой существенно расширяется, а для второй заметно сужается.

3.3. Энергетические зависимости отражений

Рассмотрим энергетические зависимости отражательной способности кристалла в окрестности температуры Нееля в предпочтительной угловой области, там где формируется одиночный резонанс. Выше отмечалось, что эта область лежит в стороне положительных отклонений от брэгговского угла, рис. 1. Этой области соответствуют правые склоны угловых кривых на рис. 3. Как видно на рисунке, с точки зрения выигрыша интенсивности, нас должны интересовать угловые кривые, полученные для π -поляризованного падающего излучения при факторе асимметрии $\beta < 1$, а для σ -поляризованного падающего излучения при факторе асимметрии $\beta > 1$. Рисунок 4 дает возможность сравнить энергетические зависимости отражательной силы кристалла в симметричной и асимметричной геометриях для разных поляризаций падающего излучения. Очевидно спектры флюоресцентного гамма-излучения кристалла $^{57}\text{FeVO}_3$ имеют аналогичную форму.

Для описания углового распределения падающего излучения принята функция Гаусса шириной на полувысоте 25 мкрад. Центр распределения, или угол падения падающего излучения варьировался во всем интервале углов на правом склоне кривых.

Подбирался оптимальный для каждой поляризации падающего излучения и каждого фактора асимметрии угол, при котором спектр испускаемого излучения имел вид одиночного пика с шириной на полувысоте 1.25Г.

Для сравнения спектров в асимметричной геометрии были выбраны случаи скользящего падения с фактором асимметрии $\beta = -0.25$ и крутого падения с $\beta = -4.0$ (соответствующие матрицы ядерной восприимчивости представлены в табл. 1). В симметричной геометрии, $|\beta| = 1$, угол падения составил 80 мкрад для каждой из поляризаций падающего излучения; в асимметричной геометрии при $|\beta| = 0.25$ углы падения были 110 мкрад и 260 мкрад соответственно для π - и для σ -поляризованного излучения, при $|\beta| = 4$ углы падения были 60 мкрад и 45 мкрад соответственно для π - и σ -поляризованного излучения.

Как видно на рис. 4, при выбранных условиях в спектрах гамма-излучения доминирует одиночная резонансная линия. В симметричной геометрии энергетические распределения испускаемых гамма-лучей для разных поляризаций падающего излучения очень схожи между собой (кривые темно-голубого цвета). На рисунке видно также, что комбинация скользящей геометрии и π -поляризованного синхротронного излучения имеет существенные преимущества с точки зрения интенсивности испускаемых возбужденными ядрами гамма-лу-

Таблица 2. Матрицы ядерной восприимчивости кристалла $^{57}\text{FeVO}_3$ для асимметричных отражений (445), (566) и (3311)

Ядерные резонансы	1	3	4	6
Падающее π -поляризованное излучение, 2 кЭ				
Положение в ед. Г	-2.08	1.70	-1.84	2.22
Рефлекс (3311), $\beta = -0.731$				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & -0.72i \\ 0.72i & -16.10 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & -12.01i \\ 12.01i & -20.69 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & -0.65i \\ 0.65i & -14.99 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & 13.38i \\ -13.38i & -20.70 \end{Bmatrix}$
Рефлекс (445), $\beta = -0.221$				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.68i \\ -0.68i & -14.62 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & 11.45i \\ -11.45i & -18.79 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.62i \\ -0.62i & -13.62 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & -12.75i \\ 12.75i & -18.80 \end{Bmatrix}$
Рефлекс (566), $\beta = -0.477$				
$\begin{Bmatrix} \eta_{00}^{\pi\pi} & \eta_{01}^{\pi\sigma} \\ \eta_{10}^{\sigma\pi} & \eta_{11}^{\sigma\sigma} \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.65i \\ -0.65i & -12.98 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -6.97 & 10.79i \\ -10.79i & -16.69 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -0.03 & 0.58i \\ -0.58i & -12.09 \end{Bmatrix}$	$\begin{Bmatrix} -8.65 & -12.01i \\ 12.01i & -16.69 \end{Bmatrix}$

чей. В этом случае интенсивность излучения почти в два раза выше интенсивности излучения в симметричной геометрии. Геометрия крутого падения при любой поляризации уступает упомянутому выше случаю. Очевидно, что причиной таких результатов является анизотропия рассеяния в направлениях $0 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 1$, которая, как было показано в работе [21], обусловлена интерференцией волн излучения в спиновом пространстве. Обнаруженные нами в гипотетической ситуации свойства чисто ядерной дифракции в кристалле бората железа стали мотивацией поисков оптимальных решений в реальных случаях. Изложенные выше особенности позволяют ожидать и в реальном кристалле заметного увеличения его отражательной силы при переходе к асимметричной геометрии дифракции.

3.4. Асимметричные отражения в реальном кристалле

До сих пор мы рассматривали искусственно смоделированные случаи асимметричных отражений. В реальности для генерации синхротронного мессбауэровского излучения используются пластинчатые кристаллы бората железа, у которых плоскости (111) лежат параллельно поверхности кристалла. Тем не менее в этих кристаллах можно найти ряд отклоненных от поверхности кристалла плоскостей, отвечающих требованиям чисто ядерной ди-

фракции. Брэгговские отражения от этих плоскостей должны иметь сумму индексов Миллера равную нечетному числу. Для выбора подходящих отражений был необходим соответствующий анализ. С этой целью был проведен расчет матриц ядерной восприимчивости кристалла для целого ряда асимметричных отражений в геометрии Брэгга. Из них мы выбрали те, которые имеют явное преимущество по интенсивности генерируемого гамма-излучения. В качестве первых кандидатов оказались отражения (3311), (445), (566). В табл. 2 представлены матричные элементы ядерной восприимчивости для этих асимметричных отражений в геометрии скользящего падения лучей, которая, как мы выяснили выше, является более выгодной для достижения поставленных целей. В сравнении с геометрией крутого падения она предоставляет существенно более широкую угловую зону для генерации гамма-излучения, обладающего однолинейным спектром. Кроме того выбор был сделан в пользу π -поляризации синхротронного излучения, которая также является предпочтительной в отношении интенсивности генерируемого гамма-излучения (см. рис. 4). На рис. 5 показаны угловые зависимости интенсивности отражений для представленных в табл. 2 рефлексов и π -поляризованного синхротронного излучения, возбуждающего ядра. Интенсивность в максимуме для всех изученных отражений оказалась приблизительно одинаковой. Но размер угловой области пра-

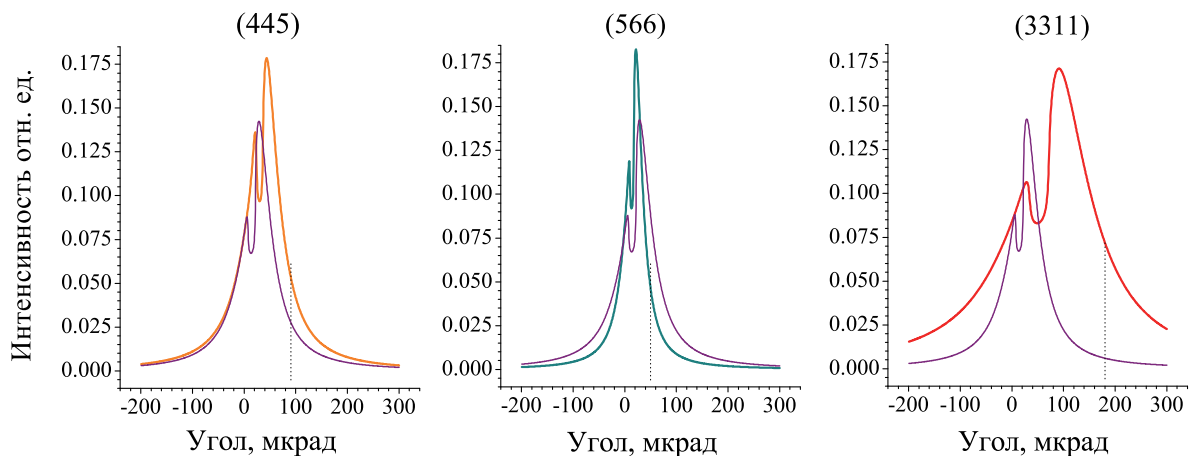


Рис. 5. Угловые зависимости интенсивности чисто ядерной дифракции π -поляризованного синхротронного излучения от кристалла $^{57}\text{FeBO}_3$ в асимметричных отражениях (445), (566), (3311) при локальном магнитном поле на ядрах 2 кЭ. Кривая фиолетового цвета показывает для сравнения угловую зависимость для симметричного отражения (333). По горизонтальной оси отложен угол отклонения от брэгговского положения кристалла. Интеграл по энергии взят во всей резонансной области от -7Γ до 10Γ . Вертикальные пунктирные линии указывают углы падения синхротронного излучения, выбранные для генерации ядерного резонансного гамма-излучения (спектры излучения показаны на рис. 6)

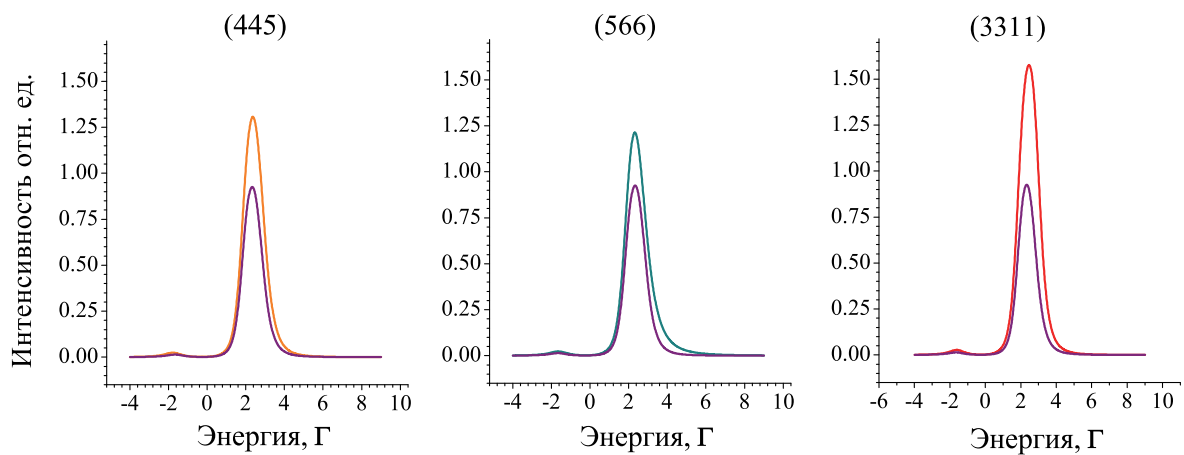


Рис. 6. Спектры гамма-излучения, испускаемого кристаллом $^{57}\text{FeBO}_3$ при возбуждении ядер железа синхротронным π -поляризованным излучением. Излучение падает на кристалл в окрестности брэгговских асимметричных отражений (445), (566), (3311) в геометрии скользящего падения. Угол падения фиксирован на правых склонах угловых кривых (см. рис. 5). Локальное магнитное поле на ядрах 2 кЭ. Спектры для отражения (333) в симметричной геометрии дифракции $\beta = -1.0$ отображены кривыми фиолетового цвета

вого склона кривых — того, на котором спектр генерируемого гамма-излучения содержит единичную резонансную линию, заметно различается. Самый протяженный правый склон имеет отражение

(3311). Как известно, существенную роль в угловой протяженности брэгговского отражения играет лоренц-фактор, который из всех рассматриваемых случаев имеет максимальное значение для отраже-

ния (3311), $1/\sin 2\theta_{3311} = 5.8$ [26]. Это обстоятельство дает дополнительные преимущества рассматриваемому отражению. Далее были выполнены расчеты спектров генерируемого гамма-излучения при разных значениях угла падения синхротронного излучения во всей угловой области правого склона.

При этом предполагалось, что угловая зависимость падающего излучения имеет форму гауссовой кривой шириной 25 мкрад. Спектры, полученные при разных углах падения, различались формой и имели разную ширину энергетического распределения. Для всех рассматриваемых отражений были выбраны такие углы падения, при которых спектры имели форму одиночного резонанса с шириной на полувысоте 1.25Г.

Полученные спектры показаны на рис. 6, где они сравниваются со спектром гамма-излучения, генерируемого при тех же требованиях к углу падения в симметричном отражении (333). Как следует из рисунка, во всех рассмотренных случаях асимметричных отражений интенсивность генерируемого гамма-излучения превышает ту, которая достигается в отражении (333). Углы падения отмечены на рис. 5 вертикальными пунктирными линиями. Наибольшее превышение, почти в 1.8 раза, достигается в отражении (3311). Очевидно, кроме выявленного преимущества в силе отражения, оно дает возможность использовать более высокую расходимость падающего пучка при сохранении требуемого спектра гамма-излучения. Поэтому превосходство этого отражения может быть еще более значительным.

4. ВЫВОДЫ

В условиях сверхтонкого взаимодействия ядра ^{57}Fe с магнитным и электрическим полями в кристалле $^{57}\text{FeVO}_3$ вблизи температуры Нееля большую роль в когерентном рассеянии гамма-излучения играет интерференция в спиновом пространстве [21]. В частности, эта разновидность интерференции приводит к сильной анизотропии поляризуемости ядерной среды кристалла. В условиях анизотропии ядерной поляризуемости появляется своеобразная зависимость отражательной способности ядерной системы от выбора поляризации синхротронного излучения, возбуждающего ядра, и асимметрии геометрии брэгговской дифракции. В модельных расчетах найдены оптимальные, с точки зрения интенсивности и ширины спектральной линии, условия для генерации синхротронного мёссбауэровского излучения. Показано, что наибольшие преимущества достигаются в асимметричном обрат-

ном отражении (3311) от пластинчатого кристалла бората железа и π -поляризованном синхротронном излучении, возбуждающем ядра ^{57}Fe .

Благодарность. Автор выражает глубокую благодарность А. И. Чумакову за обсуждение статьи и полезные советы.

ЛИТЕРАТУРА

1. G. V. Smirnov, U. van Buerck, A. I. Chumakov, A. Q. R. Baron, and R. Rueffer, *Phys. Rev. B* **55**, 5811 (1997).
2. G. V. Smirnov, *Hyperf. Inter.* **25**, 91 (2000).
3. G. V. Smirnov, A. I. Chumakov, V. B. Potapkin, R. Rueffer, and S. L. Popov, *Phys. Rev. A* **84**, 053851 (2011).
4. T. Mitsui, N. Hirao, Y. Ohishi, R. Masuda, Y. Nakamura, H. Enoki, K. Sakaki, and M. Seto, *J. Synchrotron Rad.* **16**, 723 (2009).
5. V. Potapkin, C. McCammon, K. Glazyrin, A. Kantor, I. Kupenko, C. Prescher, R. Sinmyo, G. V. Smirnov, A. I. Chumakov, R. Rueffer, and L. Dubrovinsky, *Nature Commun.* **4**, 1427 (2013).
6. M. A. Andreeva, R. A. Baulin, A. I. Chumakov, R. Rueffer, G. V. Smirnov, Y. A. Babanov, D. I. Devyaterikov, M. A. Milyaev, D. A. Ponomarev, L. N. Romashev, and V. V. Ustinov, *Phys. Rev. B* **97**, 024417 (2018).
7. J. A. Sans, V. Monteseguro, G. Garbarino, M. Gich, V. Cerantola, V. Cuartero, M. Monte, T. Irifune, A. Munoz, and C. Popescu, *Nature Commun.* **9**, 4554 (2018).
8. A. Cini, M. Mannini, F. Totti, M. Fittipaldi, G. Spina, A. Chumakov, R. Rueffer, A. Cornia, and R. Sessoli, *Nature Commun.* **9**, 480 (2018).
9. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, E. Bykova, K. Glazyrin, R. Sekhar Manna, A. A. Tsirlin, V. Cerantola, I. Kupenko, A. V. Kurnosov, I. Kantor, A. S. Pakhomova, I. Chuvashova, A. I. Chumakov, R. Rueffer, C. McCammon, and L. S. Dubrovinsky, *Nature Commun.* **9**, 4142 (2018).
10. I. S. Lyubutin, S. S. Starchikov, A. G. Gavriliuk, I. A. Troyan, Yu. A. Nikiforova, A. G. Ivanova, A. I. Chumakov, and R. Rueffer, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 242405 (2018).
11. E. S. Kiseeva, D. M. Vasiukov, B. J. Wood, C. McCammon, T. Stachel, M. Bykov, E. Bykova, A. Chumakov, V. Cerantola, J. W. Harris, and L. Dubrovinsky, *Nature Geoscience* **11**, 144 (2018).

12. D. Andrault, M. Munoz, G. Pesce, V. Cerantola, A. Chumakov, I. Kantor, S. Pascarelli, R. Rueffer, and L. Hennet, *Geochem. Persp. Lett.* **6**, 5 (2018).
13. I. Kupenko, G. Aprilis, D. M. Vasiukov, C. McCammon, S. Chariton, V. Cerantola, I. Kantor, A. I. Chumakov, R. Rueffer, L. Dubrovinsky, and C. Sanchez-Valle, *Nature* **570**, 102 (2019).
14. Takaya Mitsui, Ko Mibu, Masaaki Tanaka, Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Ryo Masuda, and Makoto Seto, *J. Phys. Soc. Jpn* **89**, 054707 (2020).
15. R. A. Baulin, M. A. Andreeva, A. I. Chumakov, D. Bessas, B. S. Roshchin, D. N. Karimov, and V. E. Asadchikov, *JETP Lett.* **113**, 162 (2021).
16. R. Rueffer and A. Chumakov, *Historical Developments and Future Perspectives in Nuclear Resonance Scattering in Modern Mossbauer Spectroscopy: New Challenges Based on Cutting-Edge Techniques*, ed. by Y. Yoshida and G. Langouche, Springer (2021).
17. Г. В. Смирнов, В. В. Скляревский, Р. А. Восканян, А. Н. Артемьев, *Письма в ЖЭТФ* **9**, 123 (1969) [*JETP Lett.* **9**, 70 (1969)].
18. Г. В. Смирнов, В. В. Мостовой, Ю. В. Швыдько, В. Н. Селезнев, В. В. Руденко, *ЖЭТФ* **78**, 1196 (1980) [*JETP* **51**, 603 (1980)].
19. М. В. Зелепухин, Г. В. Смирнов, У. ван Бюрк, *ВАНТ* **4**(33), 76 (1985).
20. Г. В. Смирнов, М. В. Зелепухин, У. ван Бюрк, *Письма в ЖЭТФ* **43**, 274 (1986) [*JETP Lett.* **43**, 353 (1986)].
21. Г. В. Смирнов, *ЖЭТФ* **160**, 13 (2021) [*JETP* **133**, 7 (2021)].
22. E. Gerdau, R. Rueffer, R. Hollatz, and J. P. Hannon, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1141 (1986).
23. G. V. Smirnov, in *The Rudolf Moessbauer Story*, ed. by M. Kalvius and P. Kienly (2012), Ch. 16, p. 317.
24. V. B. Potapkin, A. I. Chumakov, G. V. Smirnov, J.-Ph. Celse, R. Rueffer, C. McCammon, and L. Dubrovinsky, *J. Synchrotron Rad.* **19**, 559 (2012).
25. G. V. Smirnov and A. I. Chumakov, *Phys. Rev. A* **100**, 043830 (2019).
26. U. van Buerck, G. V. Smirnov, and R. L. Moessbauer, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21**, 5843 (1988).