

# Модуляция мессбауэровского излучения импульсным лазерным возбуждением

Ф. Г. Вагизов<sup>+\*1)</sup>, Э. К. Садыков<sup>+</sup>, О. А. Кочаровская<sup>×\*</sup>

<sup>+</sup> Казанский (Приволжский) федеральный университет, 420008 Казань, Россия

<sup>×</sup> Институт прикладной физики РАН, 603950 Н.Новгород, Россия

<sup>\*</sup> Department of Physics, Texas A& M University, College Station, TX 77843, USA

Поступила в редакцию 22 октября 2012 г.

После переработки 12 ноября 2012 г.

Представлены экспериментальные результаты по наблюдению модуляции мессбауэровского излучения импульсным лазерным излучением. Временные спектры хорошо согласуются с моделью частотной модуляции мессбауэровского излучения при прохождении излучения через вибрирующую резонансную среду. Предложенная методика может быть использована для исследования оптико-акустических явлений.

Одним из первых модуляционных эффектов, обнаруженных с помощью эффекта Мессбауэра, является эффект ультразвуковой модуляции гамма-излучения. Первый эксперимент по ультразвуковой модуляции был проведен в 1960 г. Раби и Болефом [1]. Они показали, что спектр излучения источника  $^{57}\text{Co}$ , прикрепленного к пьезо-преобразователю, состоит из несмещенной линии и ряда симметрично расположенных сателлитов, отстоящих от центральной линии на частоту, кратную частоте преобразователя, т.е.  $n\hbar\Omega$ , где  $n = \pm 1, \pm 2, \dots$ , а  $\Omega$  – частота акустических колебаний ядер источника излучения. Чуть позже эффект ультразвуковой модуляции был продемонстрирован на ядрах  $^{119m}\text{Sn}$  в работах Бурова и др. [2], подтвержден экспериментами Cranshaw и Reivari [3] и многих других авторов, которые теоретически и экспериментально исследовали особенности проявления этого явления при акустическом и магнитострикционном возбуждении ультразвука в исследуемых объектах [4].

Интерес к изучению высокочастотной модуляции резонансного гамма-излучения обусловлен не только прикладными задачами, связанными с модернизацией и улучшением техники мессбауэровского эксперимента с помощью прецизионных мессбауэровских пьезо-модуляторов [5–7] и повышением точности определения малых энергетических смещений [8–11], но и фундаментальными аспектами вследствие возможности создания с помощью ультразвукового поля условий, приводящих к интерференционным явлениям в гамма-диапазоне.

В классической оптике интерференция достигается путем расщепления светового луча на компоненты, которые, проходя разные оптические пути, интерferируют и образуют дифракционную картину. Интерференционные условия для гамма-излучения можно создать и без пространственного расщепления луча, например при прохождении различных когерентных компонент излучения через поляризационную среду или составляющих излучения с различной несущей частотой через дисперсионную среду. При этом интерференция компонент когерентного излучения с различными частотами проявляется как квантовые биения [11, 12].

Высокочастотная модуляция излучения мессбауэровского источника или эффективного сечения резонансного поглотителя представляет собой достаточно эффективный инструмент для изучения интерференционных особенностей прохождения резонансного излучения через вибрирующую дисперсионную среду. В связи с этим интересной является возможность управления посредством ультразвукового поля эффективной толщиной поглотителя [13] и подавления эффекта самопоглощения в мессбауэровских источниках с высокой активностью [6], а также формирования с помощью ультразвука импульсов гамма-излучения с длительностью, много меньшей времени жизни возбужденного состояния мессбауэровского ядра [14].

В экспериментах модуляция резонансного  $\gamma$ -излучения осуществлялась преимущественно с помощью акустических пьезо-преобразователей или за счет магнитострикционных колебаний. Вместе с тем существует целый класс оптико-акустических явлений, которые могли бы быть эффективно изуче-

<sup>1)</sup> e-mail: vagizov@hotmail.com

ны с помощью эффекта Мессбауэра и использованы для модуляционных экспериментов. Рекордно высокая избирательность гамма-резонанса (вплоть до  $10^{-13}$ – $10^{-15}$ ) и чрезвычайно короткая длина волны мессбауэровского излучения ( $\lambda < 1 \text{ \AA}$ ) дают возможность наблюдать колебания ядер мессбауэровских атомов в разных неэквивалентных положениях и определять малые смещения атомов с точностью не хуже чем  $\lambda/2$ . Так, например, для перехода от деструктивной на конструктивную интерференцию между падающим и рассеянным вперед резонансным излучением (фазовый сдвиг на  $\pi$ ) для ядер  $\text{Fe}^{57}$  достаточно смещения ядра на  $0.43 \text{ \AA}$ , а для ядер  $\text{Zn}^{67}$  – на  $0.066 \text{ \AA}$ , что на несколько порядков превышает точность оптических измерений.

В данной работе приводятся результаты *proof of principle* эксперимента по наблюдению модуляции мессбауэровского излучения импульсным лазерным возбуждением.

Эксперимент был проведен в геометрии пропускания с источником  $^{57}\text{Co}$  в матрице родия. В качестве поглотителя-модулятора использовалась пластинка  $\text{MgO}:\text{Fe}^{2+}$  с широкой оптической полосой поглощения ионов железа в области  $535 \text{ нм}$ . Оптическое возбуждение осуществлялось с помощью импульсного Nd:YAG лазера (Verdi-V18, Coherent), работающего в режиме удвоения частоты основной гармоники лазерной генерации ( $532 \text{ нм}$ ). На рис. 1 приведены мессбауэровский спектр невозмущенного образ-

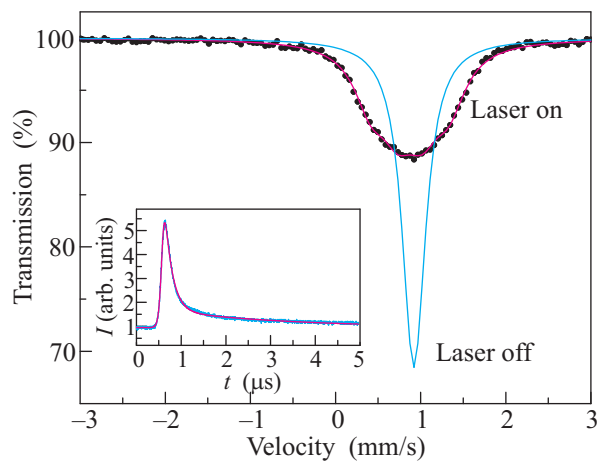


Рис. 1. Мессбауэровские спектры образца  $\text{MgO}:\text{Fe}^{57}$  без воздействия лазера (Laser Off) и при воздействии импульсного лазерного излучения (Laser On). На вставке показана форма лазерного импульса

ца  $\text{MgO}:\text{Fe}^{57}$  и спектр, полученный при воздействии на него импульсного лазерного излучения с мощностью  $1.85 \text{ Вт}$  и частотой повторения  $10 \text{ кГц}$ . Как вид-

но, воздействие оптического излучения приводит к существенному уширению резонансной линии. Наблюдаемое уширение связано с проявлением в мессбауэровском спектре оптико-акустического эффекта. Поглощение лазерного излучения образцом и последующая релаксация оптического возбуждения приводят к деформации кристаллической решетки и возбуждению акустических колебаний.

Как известно, уровень оптико-акустического сигнала пропорционален переменной части светового потока. В данной работе возбуждение акустических волн осуществлялось лазерными импульсами экспоненциальной формы с константой  $\sim 160 \text{ нс}$  (рис. 1). Образец (пластина  $\text{MgO}:\text{Fe}^{2+}$ ) прямоугольной формы был закреплен в свинцовый держатель таким образом, чтобы под воздействием оптического возбуждения в нем могли возникнуть собственные механические колебания. В этих условиях частота основной гармоники собственных колебаний пластины пропорциональна величине

$$\Omega = C c_l^2 h [(1/a)^2 + (1/b)^2], \quad (1)$$

где  $c_l$  – скорость звука продольных колебаний,  $a$  и  $b$  – поперечные размеры пластины,  $h$  – толщина пластины,  $C$  – коэффициент пропорциональности, определяемый условием закрепления пластины [15]. Колебания ядер с частотой  $\Omega$  проявляются в мессбауэровских спектрах в виде ряда симметричных спутников, отстоящих от центральной несмещенной компоненты на  $\pm n\hbar\Omega$ . Амплитуды спутников определяются функциями Бесселя первого рода ( $J_n^2$ ) при когерентных колебаниях и модифицированными функциями Бесселя ( $e^{-m^2} I_n(m^2)$ ), когда амплитуда колебаний ядер распределена по закону Релея. Если частота колебаний ядер меньше естественной ширины линии резонансного перехода  $\Gamma_0$  (для ядер  $^{57}\text{Fe}$   $\Gamma_0 \approx 1.1 \text{ МГц}$ ), то модуляция излучения проявляется в мессбауэровских спектрах только как уширение линии (рис. 1). Это значительно снижает статистическую точность определения частоты и амплитуды колебаний ядер, индуцированных лазерным излучением. В этом случае более информативными являются временные измерения по регистрации числа  $\gamma$  резонансных фотонов, прошедших через образец, в зависимости от момента времени возбуждения образца оптическим излучением. Схема экспериментальной установки показана на рис. 2. Временные измерения выполнялись с помощью преобразователя время–амплитуда (ТАС), работающего в режиме старт–стоп. Старт-импульсы для преобразователя формировались в момент излучения лазера по сигналу с фотодиода (PhD), а стоп-импульсы – в момент

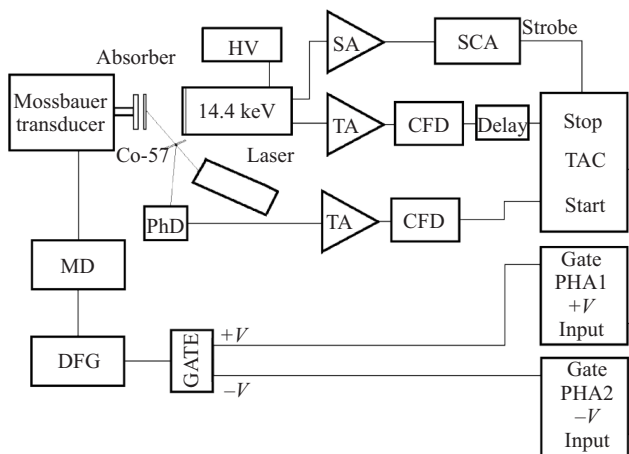


Рис. 2. Схема экспериментальной установки: ТАС – преобразователь Время–амплитуда, ПНА – амплитудный анализатор, PhD – фотодиод, CFD – дискриминатор постоянных отношений, SCA – одноканальный анализатор, ТА – временной усилитель, SA – спектрометрический усилитель, HV – источник высокого напряжения, MD – электронный блок системы движения, DFG – генератор сигналов

регистрации резонансного (14.4кэВ) фотона. Подробное описание экспериментальной установки приведено в работе [16]. На рис. 3 и 4 приведены временные зависимости интенсивности прошедшего  $\gamma$ -излучения при возбуждении поглотителя импульсным лазерным излучением ( $\lambda = 532$  нм).

На рис. 3а показан временной спектр, полученный при движении источника с постоянной скоростью, отстроенной от резонанса на  $\Delta\omega = \omega_a - \omega_s = 4\Gamma_0$ . Спектр, приведенный на рис. 4а, снят при резонансе линии излучения источника с линией поглощения образца ( $\Delta\omega = 0$ ). Приведенные зависимости имеют строго периодический характер. Это позволяет определить с хорошей точностью параметры колебаний ядер путем математической обработки экспериментального временного спектра. На рис. 3б и 4б точками, соединенными тонкой линией, показан результат фурье-анализа экспериментальных спектров, приведенных на рис. 3а и 4а. На вставках к рис. 3б и 4б для наглядности приведены фрагменты этих временных спектров в более подробном виде.

Прохождение мессбаэровского излучения через резонансную среду, вибрирующую с частотой  $\Omega$ , можно описать классическим способом [8]. В системе координат, жестко связанной с образцом, поле излучения источника определяется как

$$E_S(t) \propto \theta(t - t_0)e^{-\Gamma_0(t-t_0)/2 + i[\varphi(t) - \varphi(t_0)] + i\omega_s(t-t_0)},$$

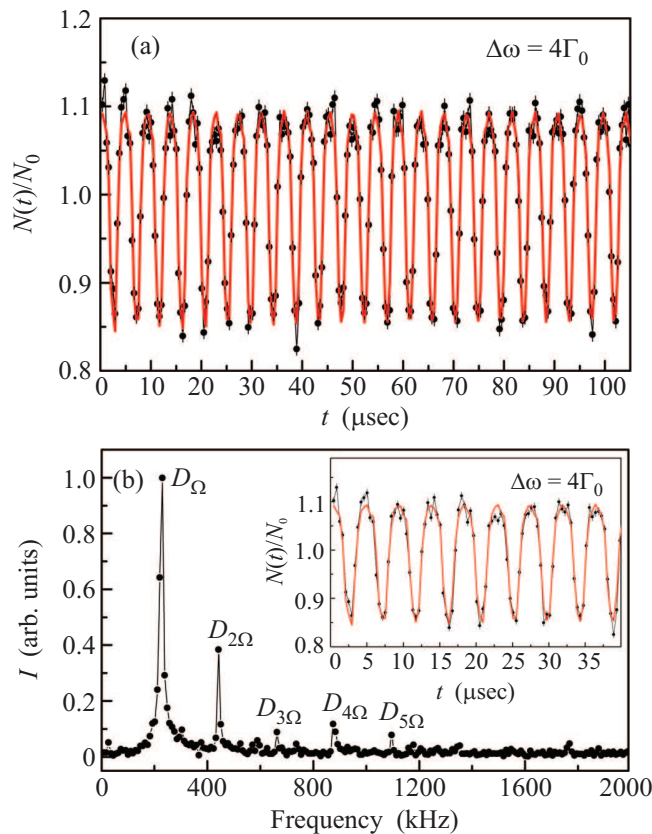


Рис. 3. Временная зависимость нормализованной интенсивности прошедшего  $\gamma$ -излучения (а) и ее фурье-спектр (б) при возбуждении поглотителя  $MgO:^{57}Fe$  импульсным лазерным излучением мощностью 1.85 Вт. Отстройка от резонанса  $\Delta\omega = 4\Gamma_0$ . На вставке показан фрагмент временного спектра. Результат аппроксимации временного спектра приведен сплошной линией (красной в электронном варианте).  $D_{n\Omega}$  – фурье-компоненты временного спектра

где  $\omega_s/2\pi$  – несущая частота излучения источника,  $1/\Gamma_0$  – время жизни возбужденного состояния ядра,  $t_0$  – момент формирования возбужденного состояния,  $\theta(t - t_0)$  – функция Хевисайда,  $\varphi(t) = x(t)2\pi/\lambda = a \sin(\Omega t + \phi)$  – функция колебаний ядер. Амплитуда  $E_T(t)$  излучения, прошедшего через поглотитель  $A(t) = \delta(t) - \theta(t)be^{i\omega_a t - \Gamma_A t/2} J_1(2\sqrt{bt})/\sqrt{bt}$  [17] и  $E_S(t)$ , где  $\omega_a/2\pi$  – резонансная частота поглотителя,  $\Gamma_A$  – ширина линии поглощения,  $\delta(t)$  – дельта-функция Дирака,  $b = T_M\Gamma_0/4$  – параметр, зависящий от естественной ширины  $\gamma$ -резонанса,  $\Gamma_0$  и эффективной толщины поглотителя  $T_M = n f_A \sigma_0$ ,  $n$  – число резонансных ядер  $Fe^{57}$  на единицу площади,  $f_A$  – фактор Лэмба–Мессбаэра ядер поглотителя,  $\sigma_0$  – сечение резонансного поглощения. Интенсивность прошедшего излучения  $N(t) \propto \langle |E_T(t)|^2 \rangle_{t_0}$ , где должно быть про-

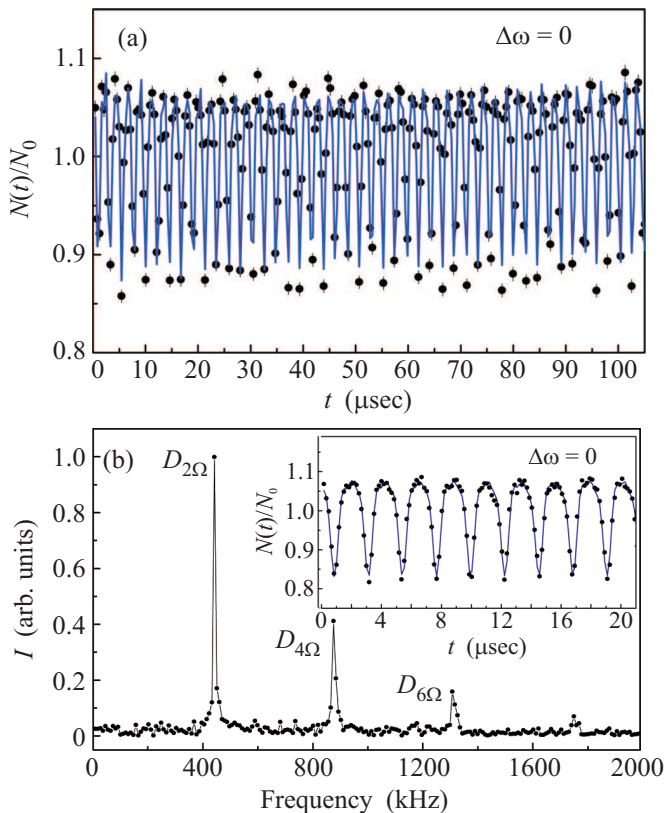


Рис. 4. Нормализованный временной спектр интенсивности прошедшего  $\gamma$ -излучения (а) и ее фурье-спектр (б) при лазерном возбуждении. Излучение источника находится в резонансе с линией поглощения образца ( $\Delta\omega = 0$ ). На вставке показан фрагмент временного спектра. Результат аппроксимации временного спектра приведен сплошной линией (синей в электронном варианте)

ведено интегрирование по случайному моменту времени  $t_0$  появления резонансного  $\gamma$ -кванта. Согласно работе [18] относительная интенсивность прошедшего излучения определяется в этом случае выражением

$$\begin{aligned}
 N(t)/N_0 &= \\
 &= \text{Re} \left\{ 1 - 2f_S b F_+(t) \int_{-\infty}^t dt' \frac{J_1[2\sqrt{b(t-t')}]}{F_+(t')\sqrt{b(t-t')}} + \right. \\
 &+ 2f_S b^2 e^{-\Gamma_a t} \int_{-\infty}^t dt' \frac{F_-(t') J_1[2\sqrt{b(t-t')}]}{\sqrt{b(t-t')}} \times \\
 &\left. \times \int_{-\infty}^t dt'' \frac{J_1[2\sqrt{b(t-t'')}]}{F_+(t'')\sqrt{b(t-t'')}} \right\}. \quad (2)
 \end{aligned}$$

где  $N_0$  – интенсивность излучения вдали от резонанса,  $f_S$  – фактор Лэмба–Мессбауэра ядер источника,  $F_{\pm} = \exp[-(\Gamma_S \pm \Gamma_A)t/2 - i\Delta\omega t + i\varphi(t)]$ .

Результат аппроксимации экспериментальных спектров выражением (2) приведен на рис. 3 и 4

сплошной линией. Подгоночными параметрами являлись частота  $\Omega$  и амплитуда колебания ядер  $a$ . В качестве фиксированных параметров использовались следующие величины:  $f_S = 0.76$ ,  $\Gamma_S = \Gamma_0$ ,  $\Gamma_A = 2.1\Gamma_0$ ,  $T_M = 2.2$ ,  $\Delta\omega$ . Для временных спектров, приведенных на рис. 3а и 4а, лучшее согласие между теорией и экспериментом наблюдается при  $\Omega = 221$  кГц и  $a = x_0 \cdot 2\pi/\lambda = 16.1$ . Величина  $\Omega$  хорошо согласуется с частотой основной гармоники собственных колебаний исследованной пластины, определяемой выражением (1), и частотой основного пика фурье-разложения временного спектра, снятого с отстройки от резонанса на  $\Delta\omega = 4\Gamma_0$  (рис. 3б).

В резонансных условиях ( $\Delta\omega = 0$ ) основной составляющей временного спектра и его фурье-разложения является компонента с частотой  $2\Omega$ . При малых амплитудах колебаний ( $x_0 \cdot 2\pi/\lambda = a < 1$ ) временная зависимость интенсивности прошедшего  $\gamma$ -излучения (2) имеет строго гармонический вид. Однако по мере увеличения амплитуды колебаний ядер форма спектра искажается и в спектре появляются четные гармоники высших порядков (рис. 4б). При отклонении от резонансных условий ( $\Delta\omega \neq 0$ ) во временном спектре наряду с четными гармониками появляются нечетные составляющие  $\Omega$ ,  $3\Omega$ ,  $5\Omega$  (рис. 3б). При этом чем больше это отклонение, тем больше амплитуда основной гармоники. Указанные изменения обусловлены интерференцией различных компонент падающего излучения с рассеянным вперед излучением [18].

Ранее в работах [8, 11] было показано, что используя отношение амплитуд фурье-компонент временного спектра, можно с высокой точностью определить малые энергетические сдвиги мессбауэровских линий (по отношению  $D_{2\Omega}/D_{\Omega}$ , где  $D_{2\Omega}$  и  $D_{\Omega}$  – амплитуды Фурье-компонент временного спектра [8]). Так, например, при использовании мессбауэровского перехода ядра  $^{67}\text{Zn}$  этим методом может быть достигнуто относительное энергетическое разрешение порядка  $\sim 3 \cdot 10^{-18}$ . Такого разрешения невозможно добиться другими спектрометрическими измерениями [19]. Отношение амплитуд составляющих фурье-разложения временного спектра может быть использовано и для определения амплитуды колебаний ядер. В случае точного резонанса между линиями испускания и поглощения ( $\Delta\omega = 0$ ) зависимость отношения  $D_{4\Omega}/D_{2\Omega}$  от  $a = x_0 \cdot 2\pi/\lambda$  имеет монотонный характер и может быть использована для определения амплитуды колебаний ядер [20].

Следует отметить, что предлагаемая методика может быть полезной также и для изучения оптико-акустических и магнитно-упругих взаимодействий,

индуцированных лазерным излучением. Регистрация акустических сигналов дает возможность получить ценную информацию о физических свойствах исследуемого объекта или процессов, индуцированных лазерным излучением. При измерении акустических сигналов обычно применяются пьезодатчики, оптические схемы регистрации, индукционные катушки и т.д. При использовании таких схем информацию извлекают главным образом из поверхностных проявлений магнитно-упругих взаимодействий (оптические схемы) или получают информацию, усредненную по всем носителям магнетизма (индукционные схемы) [21]. Несомненно, что предлагаемый выше метод позволил бы расширить экспериментальные возможности, особенно при изучении магнитных материалов с несколькими магнитными подрешетками, поскольку в этом случае возможно исследование осцилляций каждой подрешетки в отдельности с помощью настройки линии излучения источника на линию поглощения подрешетки.

Данное исследование частично поддержано Российским фондом фундаментальных исследований (гранты # 11-02-00896-а, 12-02-00263-а) и NSF.

- 
1. S. L. Ruby and D. I. Bolef, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 5 (1960).
  2. В. А. Буров, В. А. Красильников, О. Я. Сухаревская, *ЖЭТФ* **16**, 1154 (1962).
  3. T. E. Cranshaw and P. Reivari, *Proc. Phys. Soc.* **90**, 1059 (1967).
  4. J. K. Srivastava, in *Advances in Mossbauer Spectroscopy* (ed. by J. K. Srivastava), Elsevier, 1983, p. 761.
  5. J. Mishory and D. I. Bolef, *Ultrasonics* **7**, 121 (1969).
  6. D. I. Bolef and J. Mishory, *Appl. Phys. Lett.* **11**, 321 (1967).
  7. J. Mishory and D. I. Bolef, *IEEE Transactions on Sonic and Ultrasonics* **16**, 27 (1969).
  8. J. E. Monahan and G. J. Perlow, *Phys. Rev. A* **20**, 1499 (1979).
  9. G. J. Perlow, W. Potzel, R. M. Kash et al., *J. Phys. (Paris)* **35**, C197 (1974).
  10. T. Katila, K. J. Riski, and J. Ylä-Jaaski, *J. Phys. (Paris)* **41**, C121 (1980).
  11. G. J. Perlow, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 896 (1978).
  12. S. L. Popov, G. V. Smirnov, U. van Burck et al., *Europhysics Lett.* **28**, 439 (1994).
  13. F. G. Vagizov, R. A. Manapov, E. K. Sadykov et al., *Нур. Int.* **188**, 143 (2009).
  14. E. Kuznetsova, R. Kolesov, and O. Kocharovskaya, *Phys. Rev. A* **68**, 043825 (2003).
  15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лившиц, *Теория упругости*, М.: Наука, 1987.
  16. R. N. Shakhmurov, F. Vagizov, J. Odeurs et al., *Phys. Rev. A* **80**, 063805 (2009).
  17. Yu. Kagan, A. M. Afanasev, and V. G. Kohn, *J. Phys. C* **12**, 615 (1979).
  18. E. Ikonen, P. Helisto, T. Katila et al., *Phys. Rev. A* **32**, 2298 (1985).
  19. P. Helisto, E. Ikonen, T. Katila et al., *Phys. Rev. B* **30**, 2345 (1984).
  20. F. Vagizov, E. Sadykov, and O. Kocharovskaya (to be published).
  21. D. L. Dorofeev, G. V. Pakhomov, and B. A. Zon, *Phys. Rev. E* **71**, 026607 (2005).