

УДК 539.1.074:538.945/539.124+535-(34+36)

РЕГИСТРАЦИЯ МЁССБАУЭРОВСКИХ ЭЛЕКТРОНОВ КОНВЕРСИИ СТП-ДЕТЕКТОРОМ

© 2015 г. М. Г. Козин¹, И. Л. Ромашкина¹, И. О. Смирнова-Пинчукова¹,
В. П. Кошелец², Л. В. Филиппенко²

E-mail: kozin@srd.sinp.msu.ru

Сверхпроводящие туннельные детекторы на основе ниобия впервые использованы для регистрации ядерного гамма-резонанса (эффекта Мёссбауэра). В геометрии рассеяния зарегистрированы резонансные электроны, возникающие при облучении мёссбауэровским источником $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ сплава RhFe , обогащенного изотопом ^{57}Fe . Это открывает возможности применения сверхпроводящих туннельных детекторов для конверсионной мёссбауэровской спектроскопии при низких температурах и позволяет сравнить их с имеющимися разработками.

DOI: 10.7868/S0367676515080177

ВВЕДЕНИЕ

Мёссбауэровская спектроскопия конверсионных электронов (Conversion Electron Mossbauer Spectroscopy – CEMS) является общепризнанным мощным методом исследования поверхности, востребованным современными технологиями [1, 2]. В обычной мёссбауэровской спектроскопии поглощения конверсионные электроны используются в резонансных детекторах, где они образуются с помощью вещества-конвертера. Резонансное детектирование с помощью газовых резонансных детекторов позволяет повысить разрешающую способность и чувствительность метода, а в сочетании с методикой компенсации изомерного сдвига линий источника и конвертера – расширить круг используемых мёссбауэровских изотопов [3]. Общеизвестно, что при проведении мёссбауэровских экспериментов часто требуется получить спектры при достаточно низкой температуре. С этой точки зрения, попытка применения низкотемпературных детекторов на сверхпроводящих туннельных переходах (СТП-детекторов), работающих при субгелиевых температурах, для регистрации конверсионных электронов является весьма актуальной задачей.

Впервые регистрация эффекта Мёссбауэра по электронам конверсии была осуществлена в 1961 г. с помощью магнитного спектрометра [4]. Позднее те же исследователи изобрели резонансный счетчик, работающий на конверсионных элек-

тронах [5]. Как будет видно далее, наша экспериментальная техника несет в себе черты обоих этих экспериментальных методов.

Мы занимаемся разработкой и исследованием детекторов мягкого рентгеновского и гамма-излучения на основе сверхпроводящих туннельных переходов (СТП). Ранее нами была продемонстрирована возможность регистрации рентгеновского излучения $\text{Fe}K_{\alpha}$ и K_{β} (6.40 и 7.06 кэВ), а также γ -лучей 14.4 кэВ от источника $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ с помощью сверхпроводящего туннельного детектора на основе ниобия [6]. Нами также предложена идея использовать поглотитель из тантала с целью создания резонансного криогенного детектора для мёссбауэровской спектроскопии на ^{181}Ta [7]. Другие возможные схемы резонансного детектирования с использованием СТП перечислены в [8].

Насколько нам известно, ранее СТП-детекторы использовались только для узкого пучка электронов, создаваемого в низкотемпературном электронном микроскопе, с целью изучения неоднородности отклика по площади детектора [9].

В данной работе впервые СТП-детекторы на основе ниобия использованы для регистрации эффекта Мёссбауэра по конверсионным электронам в геометрии рассеяния с источником $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ и поглотителем RhFe .

1. ЭКСПЕРИМЕНТ

Цель работы – сравнение амплитудных спектров импульсов, полученных в опытах в одинаковой геометрии с рассеивателем RhFe , содержащим мёссбауэровский изотоп, и с рассеивателем из чистого Rh (без железа), которые мы далее называем резонансным и нерезонансным экспери-

¹ Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына.

² Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт радиотехники и электроники имени В.А. Котельникова Российской академии наук, Москва.

ментами соответственно. Эксперименты проводились в геометрии рассеяния при неподвижных источнике, рассеивателе и детекторах. Источник и чип с детекторами располагались под прямым углом друг к другу, а рассеиватель — под углом 45° к обоим. Схема резонансного эксперимента приведена на рис. 1. В нерезонансном эксперименте слиток из сплава заменялся фольгой из родия толщиной около 1 мм.

Использован источник ^{57}Co в матрице Rh с диаметром активного пятна 8 мм активностью 20 мКи. Никаких диафрагм не использовалось, и детекторы постоянно подвергались действию как прямого, так и рассеянного излучения.

Рассеивателем служил кусочек сплава RhFe(20%), обогащенного ^{57}Fe , с размерами $5 \times 5 \times 4 \text{ мм}^3$. Основным компонентом рассеивателя является родий — тот же элемент, что и матрица источника. Важно подчеркнуть, что макроскопически этот сплав является немагнитным [10, 11] и не может исказить магнитное поле, необходимое для работы сверхпроводящих детекторов.

В качестве детекторов использовались СТП квадратной формы со стороной 100 и 150 мкм, обозначенные цифрами 1 и 2 на рис. 1. Первый находился на расстоянии приблизительно 1 мм, второй — 2 мм от рассеивателя. Детекторы с асимметричной структурой Ti/Nb/Al/ AlO_x /Al/Nb/NbN (толщины 30/100/8/1/13/150/30 нм снизу вверх) были изготовлены в ИПЭ РАН методом магнетронного напыления и фотолитографии. Назначение слоев детектора описано в [12]; нижний электрод инактивирован, т.е. его сигнал намеренно подавлен.

Параметры детекторов были проверены в предварительном эксперименте с источником ^{55}Fe , стандартным для тестирования детекторов в мягком рентгеновском диапазоне. Для 100-микронного детектора экспериментальная ширина линии MnK_α (с энергией 5.94 кэВ) на половине высоты составила менее 80 эВ.

Измерения проводились в откачанном гелиевом стеклянном криостате при $T = 1.4 \text{ К}$ в магнитном поле порядка 100 Э, необходимом для работы детекторов и приложенном параллельно плоскости туннельного перехода вдоль диагонали квадрата. Температура измерялась германиевым термометром. Вся конструкция, схематично изображенная на рис. 1, находилась в рабочем объеме, создаваемом каркасом соленоида, погруженным в жидкий гелий. Для быстрого установления теплового равновесия и обеспечения стабильности работы детекторов рабочий объем заполнялся газообразным гелием, давление которого при комнатной температуре составляло около 0.01 бар. Такое довольно низкое, по сравнению с использовавшимся нами ранее в экспериментах с рентгеновскими и гам-

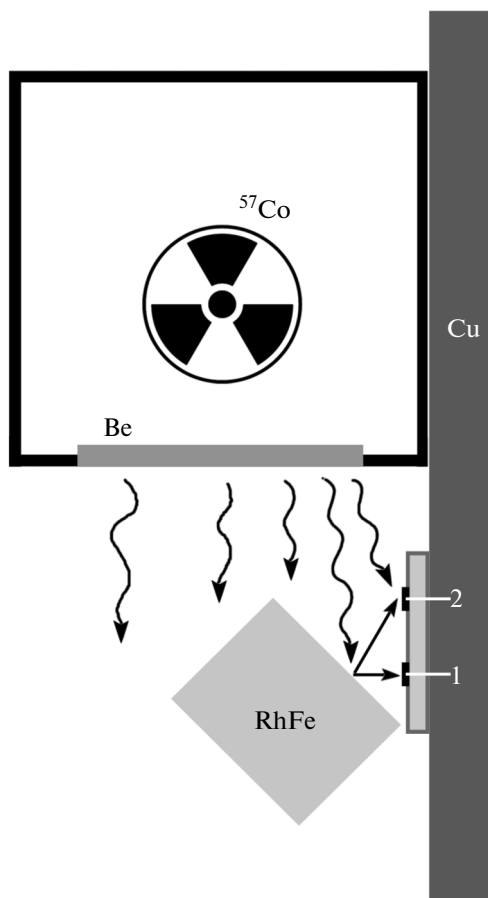


Рис. 1. Схема расположения мёссбауэровского источника, рассеивателя и детекторов с примерным соблюдением масштаба. Темной полосой условно изображен медный холодный палец криостата. Большой прямоугольник со значком радиоактивности внутри изображает источник ^{57}Co с бериллиевым окном. Детекторы со стороной 100 и 150 мкм обозначены цифрами 1 и 2 соответственно и находятся на кремниевом чипе, укрепленном на медном пальце. В нерезонансном эксперименте слиток из сплава RhFe заменялся на Rh-фольгу, помещенную на место рассеивающей грани слитка.

ма-лучами, давление было выбрано для того, чтобы при низкой температуре пробег электронов в гелии был достаточным для преодоления расстояния от рассеивателя до детекторов.

Для регистрации импульсов детекторов использовался зарядово-чувствительный предусилитель, работающий при комнатной температуре. Импульсы с предусилителя регистрировались цифровым осциллографом или поступали в усилительный тракт, состоящий из формирующего и линейного усилителей, после чего регистрировались с помощью многоканального анализатора. Контроль правильности функционирования детекторов осуществлялся по измерениям вольт-амперных характеристик (ВАХ) между спектроскопическими

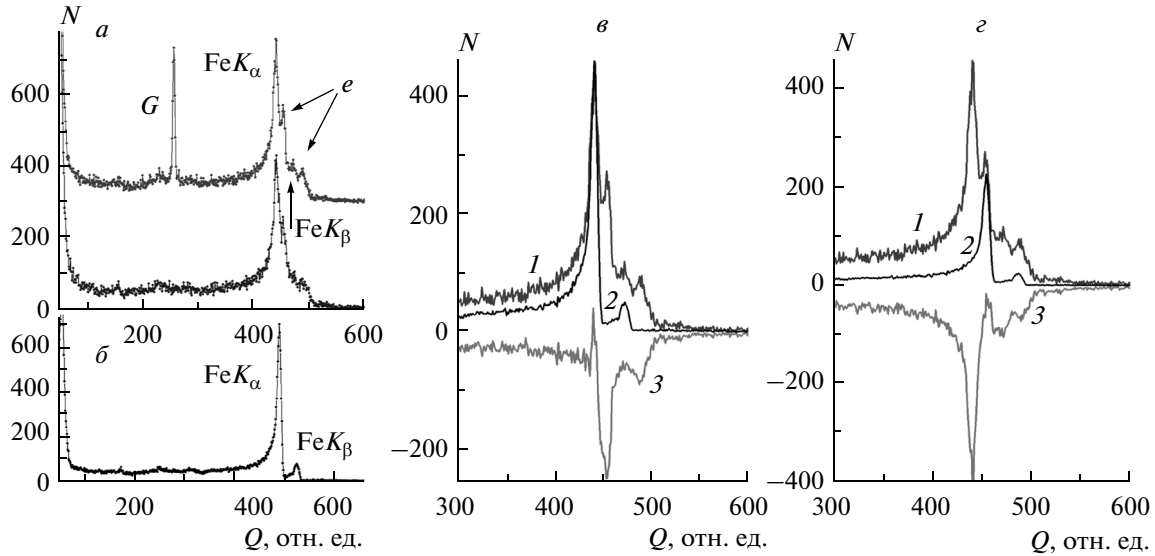


Рис. 2. *a* – амплитудные спектры импульсов в резонансном эксперименте, измеренные детектором 1 (100 мкм) с интервалом в 2 ч и экспозицией 13 мин, разнесенные по вертикали на 300 импульсов; *G* – сигнал генератора точной амплитуды, *Q* – собранный заряд (каналы), *N* – число импульсов в канале; *б* – спектр импульсов (усреднен по трем измерениям) в нерезонансном эксперименте, измеренный этим же детектором, экспозиция та же; *в* и *г* – возможные варианты выделения резонансного сигнала: 1 – резонансный эксперимент, 2 – нерезонансный эксперимент, 3 – их разность.

экспериментами. ВАХ и серии импульсов с осциллографа, а также амплитудные спектры с анализатора передавались в персональный компьютер.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ

Измерения ВАХ демонстрировали, что детекторы работали нормально во время всех описанных ниже экспериментов.

Примеры амплитудных спектров импульсов при облучении сплава RhFe для детектора со стороны 100 мкм приведены на рис. 2*a* (резонансный эксперимент). Спектры записаны при $T = 1.4$ К и смещении детектора около $V_b = 0.8$ мВ с интервалом в 2 часа и экспозицией (здесь и далее) 13 мин. Для наглядности верхний спектр сдвинут вверх на 300 отсчетов, на нем также присутствует линия генератора точной амплитуды. Спектры содержат комплекс из четырех пиков. Всего измерено семь спектров (на рис. 2*a* приведены только два), и во всех наблюдалась подобная картина. Рост интенсивности в области малых зарядов вызван сигналом инактивированного электрода, который ограничивает слева доступную для исследования область, заключенную между сигналами рабочего и инактивированного электродов.

На рис. 2*б* показан амплитудный спектр (усредненный по трем измерениям), полученный в контрольном опыте с использованием чистого родия в качестве рассеивателя (нерезонансный эксперимент), который содержит линии FeK_α и FeK_β , испускаемые источником ^{57}Co . Различие спектров

резонансного и нерезонансного экспериментов (рис. 2*a* и 2*б*), связанное с присутствием конверсионных электронов, отмечено символом *e* и стрелками.

Аналогичные данные для детектора со стороны 150 мкм приведены на рис. 3*a* и 3*б*. Различие между этими спектрами незначительное: линии спектра резонансного эксперимента несколько уширены и наблюдается немного более высокий уровень фона. Никаких явно выраженных дополнительных пиков не наблюдается. Это кардинальным образом отличается от результатов для детектора со стороны 100 мкм, где наблюдались две дополнительные линии, несмотря на то что условия этих экспериментов практически одинаковые, за исключением близости детекторов к рассеивателю.

Отметим, что временные параметры импульсов в резонансном и нерезонансном экспериментах не различаются (время нарастания около 0.15 мкс).

3. ОБСУЖДЕНИЕ

Энергии и интенсивности излучений, образующихся в процессе разрядки возбужденного состояния ядра ^{57}Fe , хорошо известны [3, 13]. Кроме рентгеновского и гамма-излучения, наблюдаются несколько групп конверсионных и оже-электронов. Заслуживают рассмотрения только К конверсионные электроны (энергия 7.3 кэВ, интенсивность 0.79 на распад) и К-LL оже-электроны (энергия 5.5 кэВ, интенсивность 0.60 на распад).

Распространение электронов в веществе характеризуется пробегом R , т.е. максимальным расстоянием, на которое пучок электронов проникает в глубь вещества [14–17]. Мы оценили величину пробега в интересующих нас материалах для электронов указанных выше энергий двумя методами: по формуле Канайя–Окаямы из [17] и используя базу данных ESTAR NIST [18]. Оценки близки с погрешностью не более 25%. Кроме величины пробега, необходимо учитывать характер распространения электронов, а именно: на первом этапе электрон теряет энергию, сохраняя в целом направление своего движения; на втором этапе движение электрона приобретает диффузионный характер. Параметром, разделяющим эти этапы, является длина изотропизации l [16], диффузионное облако описывается сферой радиуса r , тогда $R = l + r$.

Максимальный пробег в бериллии R не превышает 3.3 мкм для всех групп резонансных электронов, поэтому электроны из источника не могут преодолеть толщину Ве-окна и не вылетают из источника.

Мы рассматриваем каждую точку поверхности рассеивателя в резонансных экспериментах как источник потока электронов во всех возможных направлениях. Небольшая доля электронов с глубины до 800 нм также может достигать поверхности рассеивателя с некоторой потерей энергии. Вылетев из рассеивателя, электроны движутся в газообразном гелии, пробегая, по нашим оценкам, несколько миллиметров, и достигают детекторов.

Для идентификации линий в спектре, полученном в резонансном эксперименте (рис. 2а), мы применили два способа:

1) линия FeK_{α} совмещается с наиболее интенсивной линией в резонансном эксперименте (рис. 2в, разностный спектр отложен в отрицательном направлении оси ординат). Такой способ идентификации кажется естественным, поскольку трудно ожидать, что рассеянное излучение может превзойти прямое по интенсивности.

2) линия FeK_{α} совмещается со второй по интенсивности линией в резонансном эксперименте (рис. 2г, разностный спектр также отложен вниз). Однако в этом случае в разностном спектре получается не менее трех линий, чему трудно найти объяснение.

Мы идентифицировали линии на рис. 2а в соответствии с первым способом и соотнесли резонансные линии с электронами конверсии (7.3 кэВ) и оже-электронами (5.5 кэВ).

Не проводя разложения спектра на компоненты, а сравнивая форму линий на рис. 2а, можно отметить, что разрешение детектора для резонансных электронов того же порядка, что и для рентгеновских линий, т.е. существенно лучше, чем у газовых детекторов.

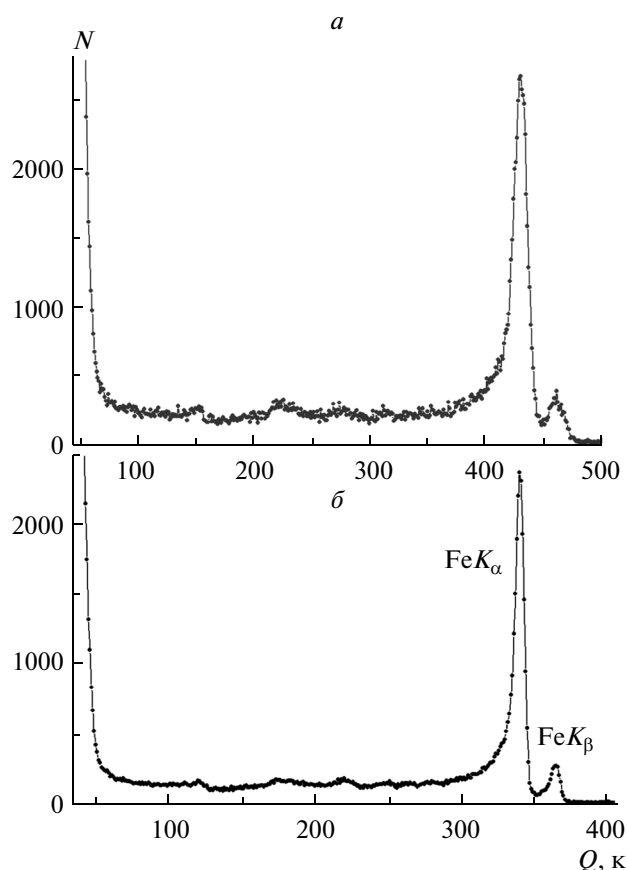


Рис. 3. а – амплитудные спектры импульсов в резонансном эксперименте, измеренные детектором 2 (150 мкм); Q – собранный заряд (каналы), N – число импульсов в канале; б – спектр импульсов (усреднен по трем измерениям) в нерезонансном эксперименте, измеренный этим же детектором.

По энергии резонансные электроны (рис. 2а) попадают в ту же область значений, что и фотоэлектроны для рентгеновских линий FeK_{α} и FeK_{β} (энергия фотоэлектронов составляет около 4 кэВ). Это означает, что заметная доля энергии резонансных электронов потеряна в гелии. Кроме того, более интенсивная электронная линия находится левее менее интенсивной электронной линии, что, исходя из таблицы интенсивности излучений при разряде мёссбауэровского уровня ядра ^{57}Fe [13, 19], свидетельствует в пользу того, что линия, соответствующая большей энергии, находится в спектре левее менее энергичной линии. Однако более естественно считать, что левая линия соответствует электронам с меньшей энергией, чем правая. Для выяснения причин такого положения требуются дальнейшие исследования. В частности, следует учесть потери энергии теперь уже не в гелии, а в детекторе и влияние соотношения пробега и толщины поглотителя на регистрируемую интенсивность и амплитуду сигнала [20].

Переходя к обсуждению причин отсутствия узких линий резонансных электронов для детекто-

ра, расположенного всего на 1 мм дальше от рассеивателя, можно предположить, что на пути к этому детектору электроны достигают этапа диффузионного распространения: длина их пути больше, чем длина изотропизации l . Площадь детектора перекрывает небольшую часть диффузионного облака, и детектор производит отсчеты, размытые по всему спектру.

Оценки показали, что в наших условиях траектории электронов между столкновениями в гелии мало отличаются от прямой и характер движения электронов в магнитном поле остается таким же, как и без магнитного поля, поэтому различие результатов для двух детекторов свидетельствует о правильности двухэтапной модели распространения электронов в гелии.

Не вызывает сомнения, что сигналы резонансных электронов могли бы быть использованы в полноценном мёссбауэровском эксперименте с разверткой по скорости, если бы источник двигался вне криостата.

ВЫВОДЫ

Представленные данные свидетельствуют о регистрации резонансных электронов, возникающих при облучении сплава RhFe излучением от мёссбауэровского источника $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$. Тем самым осуществлено наблюдение ядерного гамма-резонанса с помощью СТП-детектора на основе ниобия.

Различие данных для двух детекторов связано с особенностями распространения электронов в газообразном гелии между детекторами и рассеивателем.

Наши предыдущие [6] и настоящее исследование показывают, что СТП-детекторы могут быть использованы (по крайней мере в принципе) для всех видов мёссбауэровской спектроскопии с изотопом ^{57}Fe .

Сравнение с имеющимися разработками [2, 21, 22] позволяет надеяться, что применение СТП-детекторов для регистрации конверсионных электронов в некоторых случаях может оказаться конкурентоспособным, поскольку не требует ни высокого вакуума, ни высокого напряжения.

Авторы выражают признательность С.К. Годовикову за полезные обсуждения и А.Л. Ерзинкяну за предоставление сплава RhFe.

Данное исследование частично поддержано РФФИ, Министерством образования и науки РФ (№ 14.607.21.0100) и грантом НШ-4871.2014.2.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белозерский Г.Н. Мёссбауэровская спектроскопия как метод исследования поверхности. М.: Энергоатомиздат, 1990. 352 с.
2. Nomura K., Ujihira Y., Vertes A. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 1996. V. 202. № 1–2. P. 103.
3. Беляев А.А., Володин В.С., Иркаев С.М., Панчук В.В., Семенов В.Г. // Научное приборостроение. 2009. Т. 19. № 3. С. 41.
4. Митрофанов К.П., Шпинель В.С. // Письма в ЖЭТФ. 1961. Т. 40. Вып. 3. С. 983.
5. Митрофанов К.П., Илларионова Н.В., Шпинель В.С. // ПТЭ. 1963. № 3. С. 49.
6. Козин М.Г., Ромашкина И.Л., Сергеев С.А., Нefeldов Л.В., Кошелец В.П., Филиппенко Л.В. // ПТЭ. 2006. № 5. С. 135.
7. Козин М.Г., Ромашкина И.Л., Сергеев С.А., Нefeldов Л.В., Кошелец В.П., Филиппенко Л.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2007. Т. 71. № 9. С. 1336; Kozin M.G., Romashkina I.L., Sergeev S.A., Nefedov L.V., Koshelets V.P., Filippenko L.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Physics. 2007. V. 71. № 9. P. 1302.
8. Козин М.Г., Ромашкина И.Л. // XI Междунар. конф. по мёссбауэровской спектроскопии и ее применениям (Екатеринбург, Россия): тезисы докладов. 2009. С. 180.
9. Videler P.H., Rando Nicola, Verhoeve Peter, Peacock Anthony J., Lemke S., Martin J., Gross R., Huebener R.P., Lumley John M. // Proc. SPIE. 1994. V. 2280. EUV, X-Ray, and Gamma-Ray Instrumentation for Astronomy (September 16, 1994). P. 352.
10. Гражданкина Н.П. // УФН. 1969. Т. 11. № 5. С. 727.
11. Парфёнова В.П., Делягин Н.Н., Ерзинкян А.Л. и Рейман С.И. // ФТТ, 2000. Т. 42. № 8. С. 1465.
12. Kozin M.G., Romashkina I.L., Sergeev S.A., Nefedov L.V., Andrianov V.A., Naumkin V.N., Koshelets V.P., Filippenko L.V. // Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2004. V. 520. Issues 1–3. P. 250.
13. Wagner P.E. // J. Phys (Paris) Colloq. 1976. V. 37. P. C6-673.
14. Kanaya K., Okayama S. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1972. V. 5. P. 43.
15. Балашов В.В. Строение вещества. М.: Изд-во МГУ, 1993. 216 с.
16. Бакалейников Л.А., Флегонтова Е.Ю., Погребницкий К.Ю. и др. // Журн. техн. физики. 2001. Т. 71. № 7. С. 14.
17. Лукьянов Ф.А., Рао Е.И. и Сеннов Р.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2009. Т. 73. С. 463; Lukianov F.A., Rau E.I., Sennov R.A. // Bull. Russ. Acad. Sci. Physics. 2009. V. 73. № 4. P. 441.
18. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>
19. Новакова А.А., Кузьмин Р.Н. Мёссбауэровская конверсионная спектроскопия и ее применения. М.: Изд-во МГУ. 1989. 72 с.
20. Козин М.Г., Ромашкина И.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2012. Т. 76. № 10. С. 1186; Kozin M.G., Romashkina I.L. // Bull. Russ. Acad. Sci. Physics. 2012. V. 76. № 10. P. 1061.
21. Fujii T., Katano R., Ito S., Isozumi Y. // Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ. 1990. V. 68. № 2. С. 110.
22. Masaoka S., Katano R., Kishimoto S., Isozumi Y. // NIM B. 2000. V. 171. P. 360.