

05;12

## Одновременная гамма, рентгеновская и электронная мессбауэровская спектроскопия при низких температурах

© А.С. Камзин, Д.Б. Вчерашний

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург  
E-mail: KAMZIN@Cityline.spb.ru

Поступило в Редакцию 22 ноября 2001 г.

Описана низкотемпературная система, позволяющая одновременно снимать мессбауэровские спектры с регистрацией гамма-квантов, рентгеновского характеристического излучения, а также конверсионных и Оже-электронов в области температур от комнатной до 10 К. Система состоит из низкотемпературного детектора электронов, смонтированного в криостате, а также из счетчиков гамма-квантов и рентгеновского излучения, установленных снаружи криостата. Таким образом, описанная система реализует использование предложенного в [5] метода одновременной гамма-, рентгеновской и электронной мессбауэровской спектроскопии (ОГРЭМС) в области температур от комнатной до 10 К и проводить одновременные исследования свойств объема, приповерхностных и поверхностных слоев макроскопических кристаллов.

Для исследований фундаментальных явлений в поверхностных слоях макроскопических образцов, для установления изменения свойств объема при приближении к поверхности кристаллов требуются методы, позволяющие одновременно извлекать информацию о свойствах поверхности и объема, и напрямую сравнивать полученные экспериментальные данные. Именно такие возможности, как показали результаты работ [1–3], и предоставляет метод одновременной гамма-, рентгеновской и электронной мессбауэровской спектроскопии (ОГРЭМС), впервые предложенный и разработанный в [4–7]. В [8] метод ОГРЭМС был назван Simultaneous Triple Radiation Mossbauer Spectroscopy (STRMS).

Суть метода ОГРЭМС заключается в одновременных измерениях мессбауэровских спектров с регистрацией излучений, имеющих разные длины пробега в веществе, а именно: гамма-квантов (ГК), рентгеновского характеристического излучения (РИ), а также конверсионных и Оже-электронов (КОЭ). В [5] был предложен трехкамерный детектор,

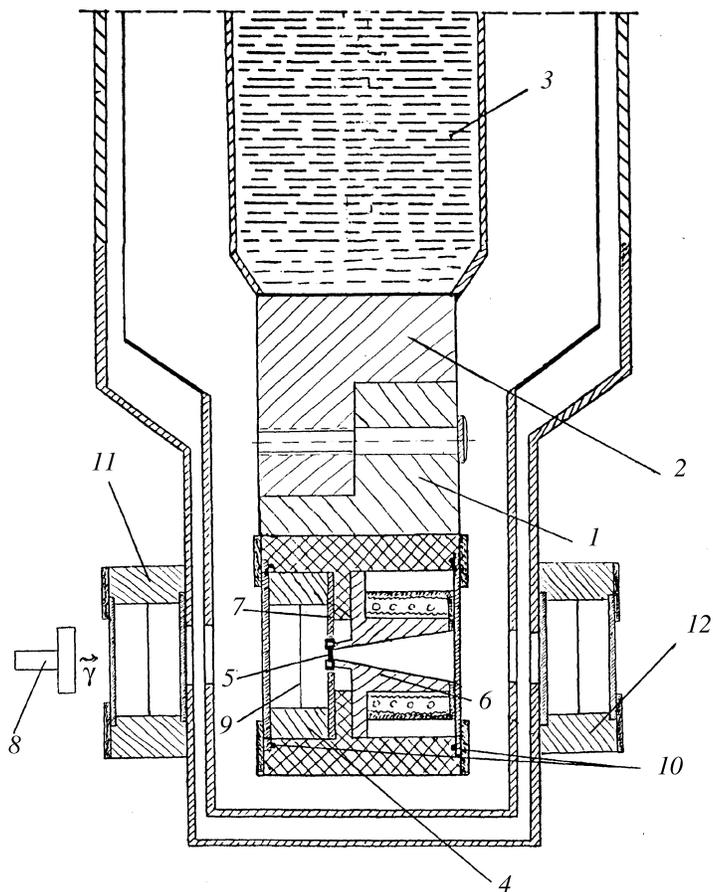
объединяющий три счетчика, регистрирующих эти излучения по отдельности. В первой камере этого детектора регистрируются ГК в геометрии пропускания их через образец, а во второй и третьей — РИ и КОЭ соответственно в геометрии обратного рассеяния. Экспериментальные мессбауэровские спектры, полученные с помощью трехкамерного детектора, несут информацию о состоянии объема, поверхностного слоя толщиной несколько  $\mu\text{m}$  и поверхностного слоя толщиной не более 300 nm (при исследованиях магнитодиэлектриков и металлов с использованием изотопа  $\text{Fe}^{57}$ ). Экспериментальная методика, описанная в [5–7], позволяет проводить исследования в области температур от комнатной до 850 К.

Проточные пропорциональные детекторы, с использованием которых была разработана методика для ОГРЭМС, широко применяются для регистрации низкоэнергетических излучений. Это объясняется простотой их изготовления для соответствующей экспериментальной установки, хорошим разрешением низкоэнергетических излучений по энергиям и высокой эффективностью регистрации излучений, по сравнению с другими типами детекторов. Необходимость применения в экспериментальных исследованиях (например, в конверсионной электронной мессбауэровской спектроскопии) приборов, регистрирующих излучения в широкой области температур, привела к созданию высокотемпературных [5,9] и низкотемпературных детекторов [10,11] низкоэнергетических электронов (до 15 keV). Однако условия работы пропорциональных детекторов в областях температур, отличных от комнатной, не изучены в полной мере, поэтому эффективное использование таких счетчиков требует дальнейшего изучения их возможностей. Таким образом, развитие такой области науки, как физика поверхности, поставила экспериментаторов перед необходимостью разработки методики, реализующей применение метода ОГРЭМС в область температур ниже комнатной.

В данной работе описан проточный пропорциональный детектор для регистрации электронов в области температур от комнатной до 10 К. Разработанный низкотемпературный счетчик электронов в сочетании с детекторами, регистрирующими гамма-кванты и рентгеновское характеристическое излучение, позволяет использовать систему, реализующую метод ОГРЭМС [5–7], для изучения свойств поверхности и объема кристаллов в области температур от комнатной до 10 К.

Для регистрации гамма-квантов, рентгеновского характеристического излучения, а также конверсионных и Оже-электронов в разработанной системе были выбраны газопроточные пропорциональные детекторы. Причины такого выбора были перечислены выше. Конструкция, построенная нами, размещена в низкотемпературном криостате, схема которого показана на рис. 1. Основная сложность, возникающая при выборе проточного детектора для регистрации конверсионных и Оже-электронов, заключается в следующем. Исследуемый образец необходимо устанавливать непосредственно в детекторе электронов потому, что для окон в криостате не существует материалов, „прозрачных“ для электронов. Таким образом, проточный детектор электронов должен находиться и работать в той области температур, при которых проводятся измерения мессбауэровских спектров изучаемого кристалла. Исходя из вышеизложенного, счетчик электронов был установлен, как показано на рис. 1, на медном держателе 1, прикрепляемом к выступу стержня 2, припаянному к сосуду 3, в который заливается хладагент (жидкий гелий или азот, в зависимости от требуемой температуры измерений). При экспериментах в области температур, далекой от точки кипения охлаждающей жидкости, между держателем 1 и стержнем 2 устанавливаются термоизоляционные прокладки для уменьшения теплопередачи от детектора к сосуду с хладагентом. Это также способствует устранению вибраций, возникающих при интенсивном кипении хладагента, которые через держатель 1 передаются на счетчик электронов и не позволяют проводить мессбауэровские измерения.

Корпус детектора электронов 4 изготовлен из дюралюминия. Исследуемый образец 5 монтируется на нагревателе 6 и устанавливается в отверстие бериллиевого окна 7 с одной стороны рабочего объема счетчика 4. С другой стороны рабочая зона детектора электронов 4 закрыта также бериллиевой фольгой, являющейся окном, через которое гамма-излучение от мессбауэровского источника 8 падает на исследуемый образец. Нагреватель 6 представляет собой медную втулку, на которую через электроизолирующую прокладку намотан нихромовый провод диаметром 0.3 mm. Для измерения температуры используется медь-константановая термопара, установленная на исследуемом кристалле. Другая термопара, смонтированная непосредственно в нагревателе, служит датчиком для системы электронной стабилизации температуры образца, путем изменения силы тока, протекающего через нихромовый провод нагревателя. Анодом 9 в детекторе служит позолоченная вольф-

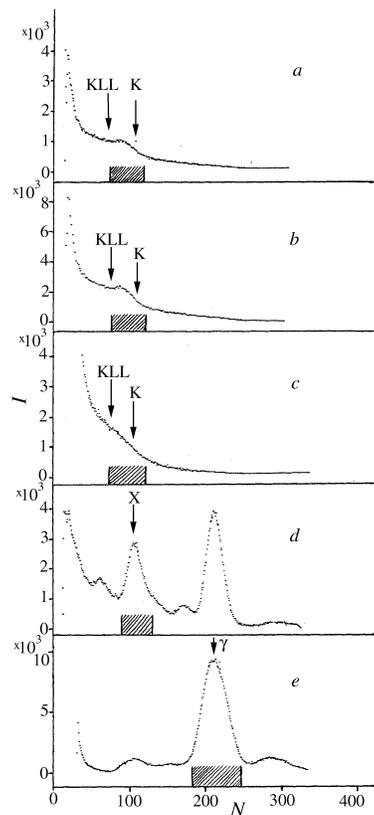


**Рис. 1.** Схема низкотемпературной системы для одновременной мессбауэровской спектроскопии с регистрацией гамма-квантов, рентгеновского характеристического излучения, а также конверсионных и Оже-электронов: 1 — медный держатель, 2 — стержень-хладопровод, 3 — сосуд с хладагентом (жидким гелием или азотом), 4 — корпус детектора электронов, 5 — исследуемый образец, 6 — нагреватель, 7 — бериллиевые окна, 8 — мессбауэровский источник, 9 — анод, 10 — пазы для индиевой проволоки, 11 — корпус детектора рентгеновского характеристического излучения, 12 — корпус детектора гамма-излучения.

рамовая проволока толщиной  $30\ \mu\text{m}$ . Газовая смесь подается в рабочую зону детектора и выпускается из нее по трубочкам, впаянным в держатель. Для изоляции рабочего газа детектора от вакуумной рубашки криостата используется индиевая проволока, которая прокладывается в соответствующие пазы 10.

Детектор 11, регистрирующий рентгеновское характеристическое излучение в геометрии обратного рассеяния от исследуемого кристалла, был смонтирован, как показано на рис. 1, на наружном окне криостата. Рабочий объем счетчика, изготовленного из дюралюминия, составляет  $8 \times 30 \times 40\ \text{mm}$ . Для регистрации гамма-излучения в геометрии пропускания их через образец используется детектор 12, установленный (рис. 1) на противоположном бериллиевом окне криостата. Катодами в этих счетчиках служат бериллиевые окна и дюралюминиевые корпуса счетчиков, а анодами — позолоченная вольфрамовая проволока толщиной  $30\ \mu\text{m}$ . Как видно из рис. 1, детекторы гамма-квантов 11 и рентгеновского излучения 12 находятся снаружи криостата, т.е. при комнатной температуре. Режимы эксплуатации таких детекторов при комнатных условиях известны (см., например, [10]). Как было показано в предыдущих публикациях [5–7], хорошее разрешение по энергиям и высокая эффективность работы счетчиков гамма- и рентгеновских квантов достигается при использовании смеси газов  $\text{Ag}+5\% \text{CH}_4$ . Исходя из этого, в системе, описываемой в данной работе, для регистрации гамма- и рентгеновского излучения мы также использовали газовую смесь  $\text{Ag}+5\% \text{CH}_4$  в счетчиках 11 и 12 (рис. 1).

Основной сложностью при использовании пропорциональных детекторов электронов в области температур, отличной от комнатной, является подбор рабочего газа, имеющего наибольшую эффективность регистрации излучения при данных температурах. В низкотемпературном детекторе электронов мы испытывали различные газы, а также и смеси газов. Эксперименты показали, что в области температур от комнатной до  $77\ \text{K}$  эффективность работы газовой смеси  $\text{He}+5\% \text{CH}_4$  практически не снижается. При измерениях ниже  $77\ \text{K}$  эффективность счета электронов при использовании смеси  $\text{He}+5\% \text{CH}_4$  резко падает. Опыты с применением газов  $\text{Ne}$ ,  $\text{He}$  и  $\text{H}_2$  показали, что в области температур от  $77$  до  $25\ \text{K}$  наилучшие результаты получаются при заполнении детектора чистым  $\text{H}_2$ . Следует отметить, что это согласуется с данными работы [11], в которой была продемонстрирована эффективная работа детектора электронов в области температур от

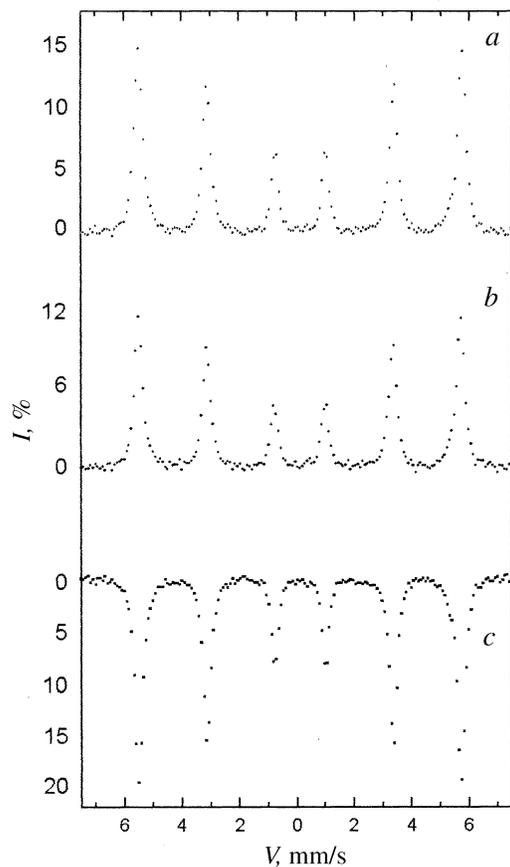


**Рис. 2.** Энергетические спектры, полученные с помощью низкотемпературной системы при регистрации конверсионных и Оже-электронов при температурах 10, 30 и 80 К — соответственно *a, b, c*. Линии, соответствующие Оже-электронам с энергией 5.6 keV и конверсионным электронам с энергией 7.2 keV, обозначены как KLL и K. Для регистрации электронов при температуре 80 К детектор электронов заполнялся смесью Ag+5% CH<sub>4</sub>, при 30 К — чистым H<sub>2</sub>, а при 10 К — чистым He. Энергетические спектры, полученные при регистрации сигнала со счетчика рентгеновского излучения (*d*), а также с детектора гамма-квантов (*d*), заполненных газовой смесью Ag+5% CH<sub>4</sub>. Линия, соответствующая рентгеновскому характеристическому излучению с энергией 6.3 keV обозначена буквой X (*d*), тогда как линия мессбауэровского гамма-излучения с энергией 14.4 keV — буквой  $\gamma$  (*e*).

комнатной до 15 К при использовании чистого  $H_2$ . Однако существенная взрывоопасность при работе с водородом значительно ограничивает его применение. Кроме того, как было отмечено в [11], водород зачастую может вступать в реакцию с исследуемым образцом. Поэтому чистый водород мы использовали при измерениях от 77 до 25 К. В области температур от 25 до 10 К, как показали эксперименты, высокая эффективность регистрации электронов достигается при использовании чистого He.

С помощью разработанной низкотемпературной системы регистрации электронов с использованием мессбауэровского источника гамма-квантов  $Co^{57}$  в матрице Rh активностью 1.86 GBq и фольги железа с 25%-ным содержанием изотопа  $Fe^{57}$  были сняты энергетические спектры. Примеры энергетических спектров электронов, полученных при температурах 10, 30 и 80 К, показаны соответственно на рис. 2, *a, b, c*. На приведенных спектрах хорошо наблюдается линия, состоящая из линий Оже-электронов с энергией 5.6 keV и конверсионных электронов с энергией 7.2 keV, которые обозначены на рис. 2 соответственно KLL и K. Разработанная система имеет три детектора, в которых регистрируются разные излучения, а именно электроны, рентгеновское излучение и гамма-кванты. Это позволяет одновременно с энергетическими спектрами электронов снимать энергетические спектры с регистрацией сигналов со счетчиков рентгеновского излучения и гамма-квантов, представленные на рис. 2, *d* и *e* соответственно. Наблюдаемая на рис. 2, *d* линия, принадлежащая рентгеновскому характеристическому излучению с энергией 6.3 keV, обозначена буквой X, тогда как линия  $\gamma$  на рис. 2, *e* соответствует мессбауэровскому гамма-излучению с энергией 14.4 keV.

Экспериментальные мессбауэровские спектры фольги железа с естественным содержанием изотопа  $Fe^{57}$ , снятые при температуре 10 К с регистрацией гамма-квантов, рентгеновского характеристического излучения, а также конверсионных и Оже-электронов с помощью разработанной системы, показаны на рис. 3. При этом для регистрации мессбауэровских спектров окна дискриминаторов по энергиям электронов, рентгеновского характеристического излучения и гамма-квантов были настроены на заштрихованные участки энергетических спектров, как это показано на рис. 2, *c, d, e* соответственно. Компьютерный анализ спектров, приведенных на рис. 3, а также спектров, снятых при



**Рис. 3.** Мессбауэровские спектры, полученные при регистрации излучений в областях, обозначенных штрихами на представленных на рис. 2 энергетических линиях, соответствующих конверсионным и Оже-электронам с энергиями 7.2 и 5.6 keV (*a*), рентгеновского характеристического излучения с энергией 6.3 keV (*b*) и мессбауэровского гамма-излучения с энергией 14.4 keV (*c*).

температурах ниже комнатной, показал, что такой важный параметр, как ширина спектральной линии, совпадает по величине со значениями, полученными для спектров, снятых при комнатной температуре.

Таким образом, разработан низкотемпературный детектор электронов, позволяющий применить метод ОГРЭМС для проведения одновременных исследований свойств поверхности и объема макроскопических кристаллов в области температур от комнатной до 10 К.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 01-02-17889).

## Список литературы

- [1] Камзин А.С., Григорьев Л.А. // ЖЭТФ. 1993. Т. 104. В. 10. С. 3489.
- [2] Kamzin A.S., Grigor'ev L.A. // J. Appl. Phys. 1994. V. 75. N 10. P. 7099.
- [3] Камзин А.С., Ольховик Л.П., Розенбаум В.Л. // ЖЭТФ. 1997. Т. 111. В. 4. С. 1426.
- [4] Kamzin A.S., Rusakov V.P., Grigor'ev L.A. // Physics of Transition Metals / Proceedings of the International Conference. USSR, 1988. Pt. 2. P. 271.
- [5] Камзин А.С., Григорьев Л.А. // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. В. 16. С. 38–41.
- [6] Камзин А.С., Григорьев Л.А. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 8. С. 50.
- [7] Камзин А.С., Григорьев Л.А. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 21. С. 32.
- [8] Gonser U., Schaaf P., Aubertin F. // Hyperfine Interactions. 1990. V. 66. P. 95.  
Schaaf P., Gonser U. // Hyperfine Interactions. 1990. V. 57. P. 2101.
- [9] Isozumi Y., Kurakado M., Katano R. // Rev. Sci. Instrum. 1981. V. 52. N 3. P. 413.
- [10] Белозерский Г.Н. Мессбауэровская спектроскопия как метод исследования поверхности. М.: Энергоатомиздат, 1990. 590 с.
- [11] Fukumura K., Nakanishi A., Kobayashi T. // Nucl. Instrum Meth. in Phys. Res. 1994. B86. P. 387.