

УДК 548.1:533.9

ОПТИЧЕСКОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ МЕССБАУЭРОВСКИХ СПЕКТРОВ ПОВЕРХНОСТИ α -ЖЕЛЕЗА

В.Г. Кириченко, С.В. Еремін

*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, Институт высоких технологий,
61108, г. Харьков, пр. Курчатова, 31.*

E-mail: kirichenko@pht.univer.kharkov.ua

Поступила в редакцию 29 марта 2010г.

Предложен метод оптического детектирования ядерных γ -резонансных спектров рассеяния при анализе поверхности чистого железа и ДУО–железа. Обнаружено, что газовый разряд в пропорциональных детекторах сопровождается высвечиванием оптических фотонов. Разработана методика регистрации оптических спектров, связанных с газовым разрядом в пропорциональном детекторе МСКЭ. Сопоставлены одновременно полученные спектры: электронные спектры рассеяния и спектры, полученные с помощью регистрации интегрального оптического свечения, сопровождающего газовый разряд. Обнаружено, что оптические (фотонные) спектры обратного рассеяния регистрируются в случае электронов, излученных из поверхностных слоев деформированных фольг железа. Это подтверждается сравнением фотонных спектров с полученными экспериментальными зависимостями относительной интенсивности линий спектра рассеяния от угла падения γ -квантов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: мессбауэровская спектроскопия, конверсионные электроны, газоразрядный детектор.

OPTICAL DETECTION OF MÖSSBAUER α -IRON SURFACE SPECTRUM

V.G. Kirichenko, S.V. Eremin

Kharkov National Karazin University, High Technology Institute,

31 Kurchatov St., Kharkov, 61108, Ukraine.

In this work propose a method of optical detecting nuclear γ - resonant spectra of dispersion at the analysis of a surface of pure iron and DSO-iron. It is revealed that the gas category in proportional detectors is accompanied highlighting optical photons. The technique of registration of the optical spectra connected with the gas category in proportional detector MSCE is developed. Simultaneously received spectra are compared: electronic spectra of dispersion and the spectra received by means of registration of an integrated optical luminescence, accompanying the gas category. It is revealed that optical (photon) spectra of return dispersion are registered in a case when electrons, radiated of blankets deformed foils gland. It proves to be true comparison of photon spectra with the received experimental dependences of relative intensity of lines of a spectrum of dispersion on a hade γ - quanta.

KEY WORDS: Mössbauer spectroscopy, conversion electrons, gas-discharge detector.

ОПТИЧНА РЕЄСТРАЦІЯ МЕССБАУЄРОВСЬКИХ СПЕКТРІВ α -ЗАЛІЗА

В.Г. Кіріченко, С.В. Єрємін

Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, Інститут високих технологій,

61108, м. Харків, пр. Курчатова, 31.

Запропонований метод оптичного детектування ядерних γ - резонансних спектрів розсіяння при аналізі поверхні чистого заліза і ДЗО – заліза. Виявлено, що газовий розряд в пропорційних детекторах супроводиться висвітлюванням оптичних фотонів. Розроблена методика реєстрації оптичних спектрів, пов'язаних з газовим розрядом в пропорційному детекторі МСКЕ. Зіставлені одночасно отримані спектри: електронні спектри розсіяння і спектри, отримані за допомогою реєстрації інтегрального оптичного свчення, супроводжувачого газовий розряд. Виявлено, що оптичні (фотонні) спектри зворотного розсіяння реєструються в разі електронів, що випромінюють з поверхневих шарів деформованої фольги заліза. Це підтверджується порівнянням фотонних спектрів з отриманими експериментальними залежностями відносної інтенсивності ліній спектру розсіяння від кута падіння γ - квантов.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: мессбауєровська спектроскопія, конверсійні електрони, газорозрядний детектор.

В последнее время исключительно важной стала проблема создания функциональных материалов и изделий для ядерной, термоядерной, водородной и обычной энергетики с использованием нанотехнологий и наноматериалов [1, 2]. Будущее (IV) поколение ядерных реакторов будет использовать намного более высокие температуры. Основными проблемами ядерной энергетики, являются безопасность и оценка ресурса, достижение высокого выгорания топлива и замедление старения материалов в реакторе. Для этого необходимы новые материалы, в частности, дисперсно-упрочненные оксидами материалы, так называемые, ДУО-стали. Кроме того, большинство технологических процессов связано с нагревом, плавлением и испарением вещества. Например, методы лазерной обработки зависят от плотности излучения лазера и времени его воздействия. Исследование структурно-фазовых превращений в металлах и сплавах для ядерных реакторов и новых технологий нуждается в развитии ядерно-физических методов исследования микроскопических механизмов эволюции и стабильности микроструктуры материалов и совершенствовании экспериментальных методов исследования новых материалов (например, ядерного γ -резонанса).

Целью данной работы являлось совершенствование методики послыонного анализа приповерхностных слоев α -железа путем регистрации оптического (фотонного) излучения, связанного с газовым разрядом при регист-

рации электронов внутренней конверсии в пропорциональном детекторе и анализа угловых зависимостей рассеянного излучения в мессбауэровской спектроскопии конверсионных электронов (МСКЭ).

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

В качестве объектов экспериментального исследования использовались деформированные фольги и порошки чистого карбонильного железа, деформированные фольги α – Fe (обогащенного изотопом Fe^{57}) и пробные образцы карбонильного железа исходной высокой дисперсности, переплавленного совместно с 0,1 вес.% оксидов. В качестве ДУО-добавок использовались Fe_2O_3 , Y_2O_3 , ZrO_2 . Для исследования фазового состава поверхностных слоев железосодержащих материалов использовали мессбауэровскую спектроскопию на ядрах Fe^{57} в геометрии обратного рассеяния с регистрацией электронов внутренней конверсии (МСКЭ).

Основным элементом МСКЭ является детектор конверсионных электронов. Для получения электронных спектров использовался электростатический электронный спектрометр с запаздывающим полем. Спектрометры этого типа используют задерживающие и отражающие решетки с высоким пропусканием и хорошим разрешением. Возможности этих спектрометров реализованы не полностью в прикладных применениях МСКЭ. Полученные в данной работе электронные спектры аморфных пленок железа приведены на рис 1. Наблюдается сильная зависимость спектров от толщины поверхностных слоев, определяемая эффективностью регистрации электронов различной энергии. Полученные спектры хорошо согласуются со спектрами аморфных конденсатов железа, зарегистрированными с помощью стандартного пропорционального детектора и приведенными в работах [6-10].

На рис.2 показан стандартный спектр МСКЭ поверхности поликристаллического железа, обогащенного изотопом Fe^{57} до 85%, полученный с помощью газового пропорционального детектора конверсионных электронов [7]. Детектор МСКЭ представляет собой проточный двухнитевой счетчик конверсионных электронов, изготовленный из фторопласта.

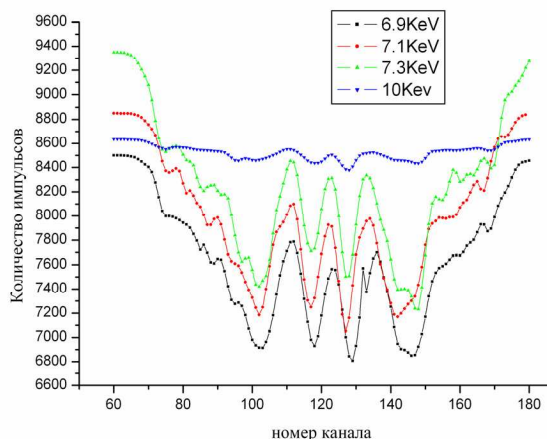


Рис.1. Электронные спектры аморфного слоя Fe^{57} пленок железа

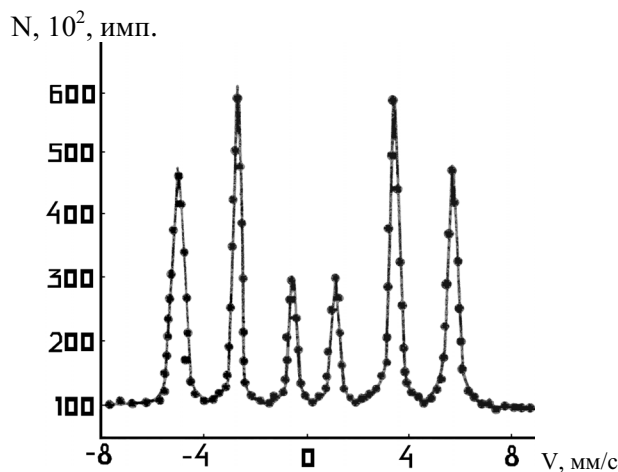


Рис.2. Спектр МСКЭ поверхности поликристаллического железа, обогащенного изотопом Fe^{57} до 85%

При рассеянии γ -квантов, кроме электронов конверсии, Оже-электронов, вторичных электронов и световых квантов возможно образование оптических фотонов в газовом разряде в области между катодом-образцом и анодом. Разработан способ регистрации спектров обратного рассеяния путем счета оптических фотонов, возникающих при разряде в камере счетчика. Для проверки и анализа этой возможности использована следующая схема эксперимента. В камеру пропорционального счетчика через входную (для γ -квантов) крышку введены световоды типа О-БХ-1 с пропускной способностью 50%. Фотоны через световоды поступают на ФЭУ-93, а импульсы напряжения далее, на регистрирующий тракт спектрометра. Рассеивателем являлась фольга Fe^{57} толщиной 10 мкм.

Излучение газового разряда, выведенное из счетчика с помощью световодов диаметром 10 мм и пропусканием 50% подвергалось спектральному анализу с использованием монохроматических фильтров оптических спектров и регистрировалась фотоумножителем ФЭУ-93. Фильтры помещались между окном ФЭУ-93 и выходными окнами световодов. Наиболее интенсивными оказались фотонные спектры, полученные для ультрафиолетовой и синей областей спектра излучение атомов гелия, в то же время для полосы $\lambda=703$ нм не получено зарегистрированных фотонов. Выбор этих фильтров был определен путем анализа наиболее интенсивных переходов в оптических спектрах гелия. Анализ поверхности образцов производили с помощью микроскопа JEOL JSM-840. Электронномикроскопические исследования проводили с помощью микроскопа ЛМ-100.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис.3 приведены макрофотографии поверхности слитка карбонильного железа с добавками ZrO_2 . На поверхности слитка наблюдаются отдельные участки с крупномасштабными структурами дендритно - волнового типа, которые образовались при быстром остывании поверхности слитка после переплава исходного микродисперсного порошка. При переплаве такого порошка значительное влияние на структуру слитка оказывает исходная дефектность и число образующихся при плавлении точечных дефектов (вакансий). Это предположение подтверждают результаты сплавления слитков из железа разной степени дисперсности с перегревом выше точки плавления на $70^\circ C$ в условиях более высокой скорости нагрева. В таких существенно неравновесных условиях при переплаве микродисперсного карбонильного железа образуется набор вылетевших с поверхности расплава микрошариков различного размера.

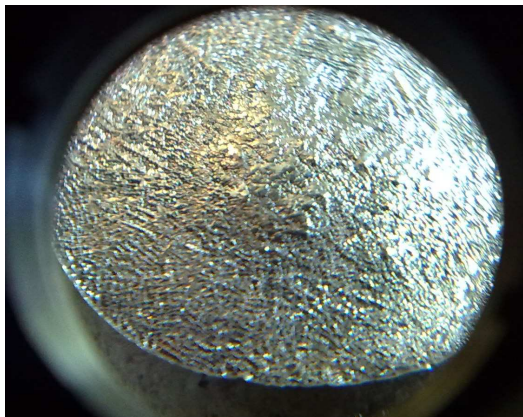


Рис.3. Макрофотографии поверхности слитка карбонильного железа с добавками ZrO_2



Рис.4. Когерентные включения в сплаве X16H8 + 0.1%TiN + 0.1%Zr, после отжига при $T=800^\circ C$ в течении 5 час и при $T=1050^\circ C$ в течении 30 мин.

Подобное явление наблюдалось при интенсивном облучении поверхности металлов, в результате чего вследствие повышенной концентрации вакансий наблюдалось формирование изолированных структур. По электронномикроскопическим данным добавка 0.1%Zr в сплав X16H8+0.1%TiN приводит к образованию гетерофазной структуры на основе смеси двух фаз $\alpha - Fe$ и $\gamma - Fe$ (рис.4). Структурный анализ показывает наличие двух типов включений TiC и TiN одновременно присутствующих в сплаве. Отжиг при $T=1050^\circ C$ приводит к рекристаллизации и появлению мелкодисперсных выделений ($d \sim 300 \text{ \AA}$) с характерным для когерентного сопряжения решеток матрицы и включения контрастом. На рис.4 стрелками показано направление отсутствия контраста на когерентных включениях.

На рис. 5 представлен электронный спектр рассеяния, полученный путем регистрации электронов внутренней конверсии. На рис.6 представлен фотонный спектр рассеяния, полученный путем регистрации фотонов, с длиной волны 384 нм.

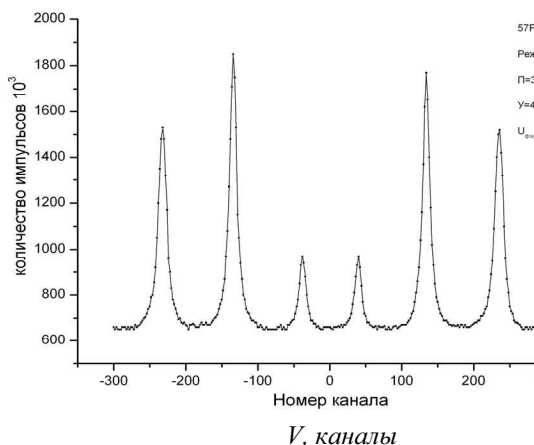


Рис. 5. Электронный спектр рассеяния поверхности фольги $\alpha\text{-Fe}^{57}$. Отношение интенсивностей линий спектра $\epsilon_{2,5}/\epsilon_{1,6}=1,2$.

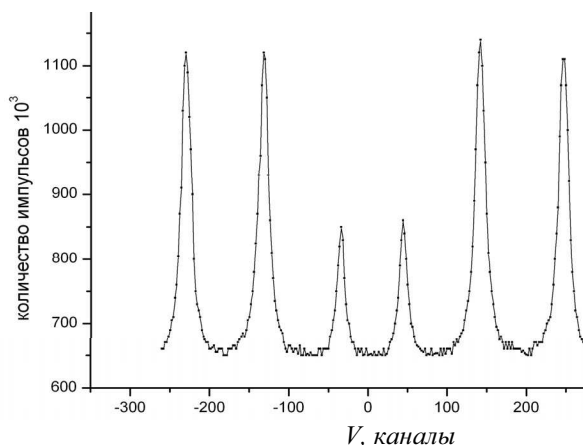


Рис. 6. Фотонный спектр рассеяния поверхности фольги $\alpha\text{-Fe}^{57}$. Отношение интенсивности линий спектра $\epsilon_{2,5}/\epsilon_{1,6}=1$.

В приведенных электронном и фотонном спектрах рассеяния фольги Fe (толщиной 10 мкм) заметна суще-

ственная разница в поляризационных характеристиках спектров рассеяния. Для спектрального анализа фотонов использовались фильтры пропускания, выбранные в соответствие с характеристиками оптических спектров атомов гелия.

Существенным является отличие в поляризации спектров рассеивания, именно, отличаются относительные интенсивности линий 2-5 и 1-6 (нумерация линий традиционная - слева направо). Для электронного спектра это отношение составляет 1,2, для фотонного оно уменьшается до 1. Это свидетельствует, что при оптическом детектировании спектров рассеивания происходит отбор фотонов (электронов) по глубине. Можно предположить, что интенсивность свечения заряда в счетчике зависит от энергии электронов, испускаемых в результате конверсии γ -квантов в приповерхностном слое, и следовательно, определяется верхними слоями наиболее близкими к поверхности скольжения. Это подтверждается измерениями угловой зависимости спектров рассеивания для того же образца Fe^{57} .

Для подробного анализа и наблюдения спектров МСКЭ в условиях дифракции γ -квантов использовались детекторы, позволяющие проводить измерение под различными углами падения квантов. Нами разработан и создан детектор для снятия угловых зависимостей в диапазоне углов падения γ -квантов ($3-90^\circ$). Угловая зависимость относительных интенсивностей линий 1-6 и линий 2-5 спектра рассеивания образца Fe^{57} приведена на рис. 7. Статистическая обработка спектров рассеивания производилась подобно обработке спектров поглощения.

При изменении угла падения γ -квантов на рассеиватель от 90 до 45 градусов соотношение $\epsilon_{2,5} / \epsilon_{1,6}$ изменится от 1,2 до 0,6, что коррелирует с изменением поляризации при оптическом детектировании спектров рассеивания. Подбирая ФЭУ с разной чувствительностью и производя дискриминацию импульсов по амплитуде, становится возможным селективное по глубине приповерхностного слоя исследование с использованием газоразрядных детекторов.

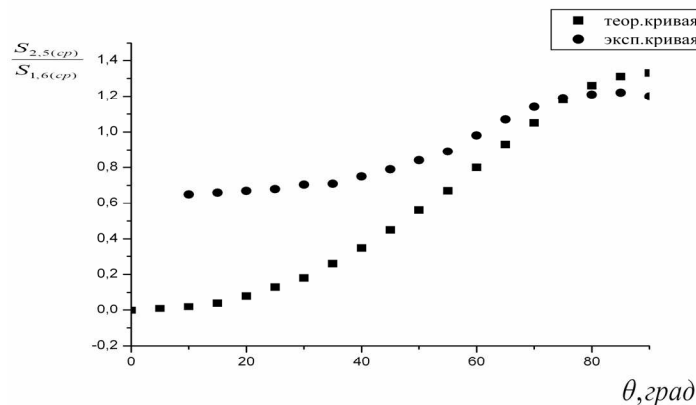


Рис. 7. Экспериментальная и расчетные угловые зависимости отношения $\epsilon_{2,5}/\epsilon_{1,6}$, линий электронных спектров рассеяния

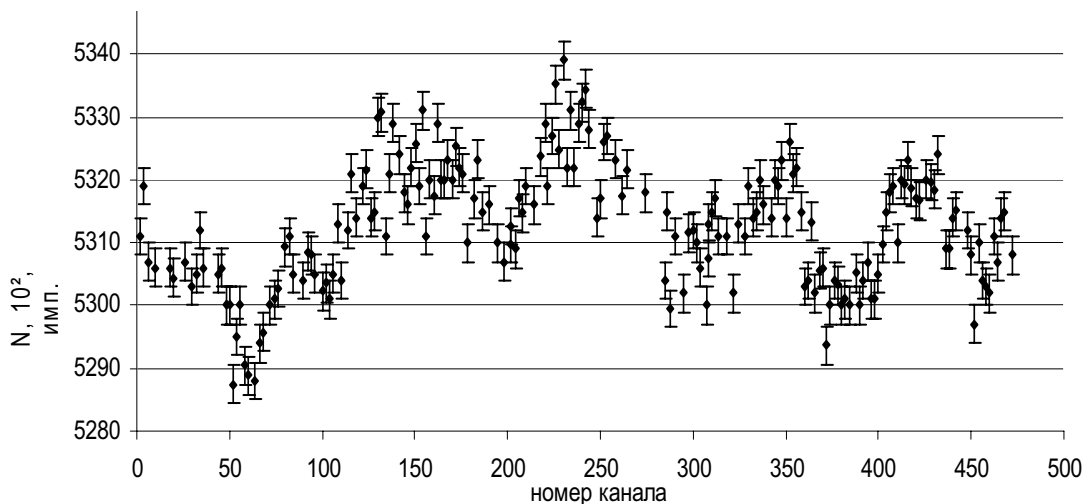


Рис. 8. Спектр рассеяния, полученный в детекторе без приложения высокого напряжения в режиме счета оптических фотонов, которые завершают каскад конверсии

Каскад процесса конверсии включает: излучение электронов с энергией 7,3 кэВ, излучение оже-электронов, и излучение оптических фотонов, поэтому измеряя спектральные характеристики фотонов, завер-

шающих каскад, можно определять параметры процессов, приводящих к испусканию фотонов. На рис.8 приведен спектр рассеяния, полученный в детекторе без приложения высокого напряжения в режиме счета оптических фотонов, которые завершают каскад конверсии. Видно, что форма спектра рассеяния отличается от характерной для кристаллического состояния поверхности ферромагнитного железа (рис.2) и проявляет определенные черты, характерные для аморфного состояния (рис.1). Возможно, это отличие связано с неоднородностью распределения деформации в тонком поверхностном слое железа.

Параметры, определяющие условия наблюдения фотонных спектров приведены в таблице. На рис. 9 приведено распределение интегральной интенсивности фотонных спектров рассеяния от напряжения на нити газового детектора. Интересно применить полученные результаты для анализа наблюдаемых зависимостей при счете фотоэлектронов при регистрации криогенной эмиссии, фотонов мерцающей флуоресценции квантовых точек. Точки возникают в мезоскопических структурах, таких как квантовые провода на основе 2D электронного газа. За счет электрон - электронного взаимодействия электроны образуют сильно коррелированное состояние [11]. Физические причины этих процессов окончательно не выяснены, хотя наблюдаемые зависимости счета фотонов в частных случаях описываются степенными законами, дробно-устойчивым распределением и т.п.

Таблица

Параметры некоторых фильтров фотонов

Фильтр	Длина волны, нм	Полоса пропускания, нм	Коэффициент пропускания, τ	Спектр
W	384	10	21	γ ; 1,3
2W	390	16	51	γ , 1,15
4W	443	10	34	
3	423	9	41	
5W	466	14	34	
6W	484	20	49	e ; 0,85
6W	484	20	49	γ , 0,71

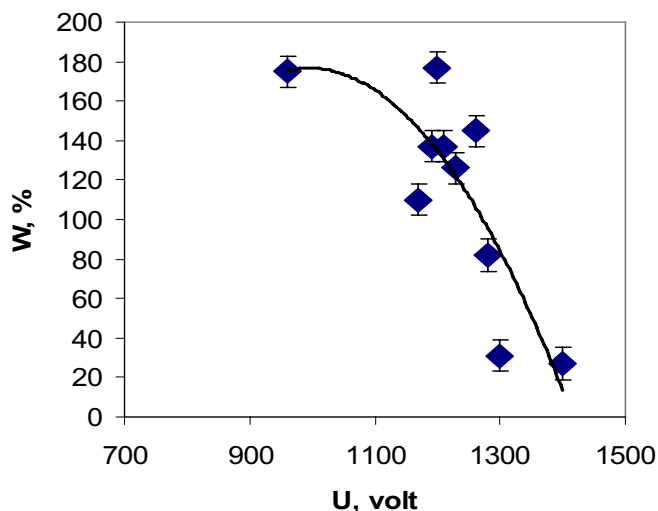


Рис. 9. Зависимость интегральной интенсивности фотонных спектров рассеяния от напряжения на нити газового детектора

ВЫВОДЫ

Разработан новый метод оптического детектирования ядерных γ -резонансных спектров рассеяния при анализе поверхности чистого железа и ДУО-железа. В работе исследованы оптические процессы, связанные с газовым разрядом в пропорциональном счетчике МСКЭ. При этом сопоставлены спектров, одновременно полученные обычным образом путем регистрации импульсов падения напряжения на аноде детектора при возникновении в нем газового разряда, т.е. электронных спектров рассеивания со спектрами, полученными с помощью регистрации интегрального оптического излучения, сопровождающего газовый разряд.

Разработанный метод оптического детектирования с использованием световодов для вывода оптических фотонов позволяет устранить влияние радиоактивного источника γ -квантов на фотокатод ФЭУ, непосредственно выводимого в объект газоразрядного счетчика. Применение монохроматических фильтров позволяет перейти

ти к анализу взаимосвязи распределения рассеянии вылетевших из образца электронов конверсии с регистрируемыми оптическими полосами.

Обнаружено, что оптические (фотонные) спектры обратного рассеяния регистрируются в случае электронов, излученных из самых верхних поверхностных слоев деформированных фольг железа (около 500\AA), что в два раза меньше, чем толщина слоя при регистрации электронов внутренней конверсии (1000\AA). Это подтверждается сравнением фотонных спектров с полученными экспериментальными зависимостями относительной интенсивности линий спектра рассеяния от угла падения γ -квантов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Путилов А.В. Разработки ФГУП ВНИИНМ в области нанотехнологий и наноматериалов // Nanoportal.ru - информационно-аналитический портал по нанотехнологиям и наноматериалам ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара.
2. Азаренков Н.А., Воеводин В.Н., Кириченко В.Г., Ковтун Г.П. Наноструктурные материалы в ядерной энергетике // Вісник Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна. - Сер. фізична "Ядра, частинки, поля". - 2010. - № 878. - Вип. 1/45/. - С. 79 – 85.
3. А. с 1567946 СССР, МКИ G 01 N 24/00/ Газовая смесь для детекторов конверсионных электронов / В.Г. Кириченко (СССР). - 5 с.
4. Игрушин В.В., Кириченко В.Г., Чекин В.В. Мессбауэровский кассетный детектор конверсионных электронов Харьков, 1993. - 7 с. Деп. в ГНТБ Украины 30.06.93. Рег.№1321-Ук93.
5. Кириченко В.Г., Николайчук Г.П., Багмут А.Г. Мессбауэровские исследования аморфных конденсатов железа. Прикладная мессбауэровская спектроскопия // Всесоюзное научное совещание. Тезисы докладов. М.: 1988.- Ч.І.-С. 99.
6. Кириченко В.Г., Николайчук Г.П., Багмут А.Г. Мессбауэровская спектроскопия конверсионных электронов аморфных и кристаллических слоев железа // Тезисы докладов IV Всесоюзн. совещан. по когерент. взаимод. излуч. с веществом. М.: ВНИИФТРИ, 1988.- С.238.
7. Багмут А.Г., Косевич В.М., Николайчук Г.П., Кириченко В.Г. Аморфизация железа и хрома при лазерном испарении //Письма в ЖТФ. - 1988.-Т.14.- Вып.23.-С.2187-2190.
8. Кириченко В.Г., Багмут А.Г., Николайчук Г.П., Долганюк И.М. Применение ядерно-физических методов для изучения аморфных металлов /Проблемы ядерной физики и космических лучей // Респ. межвед. Сборник. Харьков: "Вища школа", 1989.- С.68-71.
9. Кириченко В.Г., Николайчук Г.П., Ткаченко В.И., Игрушин В.В., Стародуб Т.К. Тонкопленочные структуры для спинового транзистора // Физические явления в твердых телах: Материалы 2-й конфер. Харьков, ХГУ, 1995.-С.63.
10. Bagmut A.G., Kosevich V.M., Nikolaychuk G.P., Kirichenko V.G., Sarana V.D. Oxygen influence on structurization in transitional metal films deposited from laser erosion plasma // Functional materials. - 1999. - Vol.6, № 5.- P.951-957.
11. Сабликов В.С., Борисов В.И., Чмиль А.И. Сильно коррелированное состояние электронов в одномерных квантовых точках //Письма в ЖТФ. - 2005. - Т.81. - Вып.2. -С.83.