

УДК 539.163

НЕКОТОРЫЕ МЕТОДИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ ЯДЕРНОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

¹Карташов В.М., ²Алдияров Н.У., ¹Талпакова К.А.,
¹Баймуханова А.Е., ²Кыдырбаева Н.К.

¹Институт ядерной физики, Алматы, e-mail: kartv@mail.ru;

²Казахский национальный технический университет имени К.И. Сатпаева, Алматы

Исследуемые методами электронной ядерной спектроскопии дискретные электронные излучения, сопровождающие распад радиоактивных ядер, включают в себя сильно отличающиеся по энергии и интенсивности электроны от околонулевых до энергии сотни кэВ и выше. Это обуславливает применение разных методов их энергетической калибровки и регистрации. Приводимые в этом кратком обзоре наши результаты получены на прецизионном магнитном β -спектрометре с двойной фокусировкой электронного пучка на угол $\rho\Omega$. Нутационная ЯМР-стабилизация его магнитного поля на равновесной орбите $r_0 = 50$ см, подгонка с помощью избирательного токового шиммирования этого поля к расчетному, специальная установка для обеспечения постоянства предыстории магнитного поля спектрометра, меняющегося из-за гистерезиса, вызванного тем, что полосные наконечники спектрометра являются железными, обеспечивают прецизионность измерения энергии изучаемых электронов. Все это обеспечивает достоверность наших экспериментальных результатов в сравнении с реперными данными, полученными на безжелезных спектрометрах лучших образцов.

Ключевые слова: ядерная электронная спектроскопия, детекторы, Оже спектроскопия, автоэмиссионная спектроскопия

SOME METHODOLOGICAL FEATURES OF NUCLEAR ELECTRON SPECTROSCOPY

¹Kartashov V.M., ²Aldiyarov N.U., ¹Talpakova K.A.,
¹Baymukhanova A.E., ²Kydyrbaeva N.K.

¹Institute of Nuclear Physics, Almaty, e-mail: kartv@mail.ru;

²K.I. Satpaev Kazakh National Technical University, Almaty

The discrete electronic radiations, studied by the electron nuclear spectroscopy, that accompany the decay of radioactive nuclei, include the electrons of very different energy and intensity from the near-zero energy up to hundreds of keV and above. It explains the application of different methods for their energy calibration and registration. Our results, presented in this brief review, were obtained on the precision magnetic β -spectrometer with double focusing of the electron beam at the angle $\rho\Omega$. Nutational NMR-stabilization of its magnetic field on the equilibrium orbit $r_0 = 50$ cm, fitting this field by selective current shimming to the rated one, the special device to ensure the constancy of the magnetic field prehistory of the spectrometer that changes due to the hysteresis caused by the iron pole tips of the spectrometer, provide precision measurements of the studied electrons. All of the above ensures the accuracy of our experimental results in comparison with the reference data, obtained on the iron-free spectrometers of the best models.

Keywords: nuclear electron spectroscopy, detectors, Auger spectroscopy, field-emission spectroscopy

Исследуемые методами электронной ядерной спектроскопии дискретные электронные излучения, сопровождающие распад радиоактивных ядер, включают в себя сильно отличающиеся по энергии и интенсивности электроны от околонулевых до энергии 10 кэВ и выше. Это обуславливает применение разных методов их энергетической калибровки и регистрации. Возросшие в последние годы требования к точности определения энергии электронного излучения [3, 9] стимулируют поиск новых методов решения этой задачи. Особые трудности возникают при решении нетипичных для ядерной спектроскопии задач в околонулевой области спектра электронного излучения [8]. Подробные исследования по технике электронной спектрометрии можно найти во многих монографиях и обзорных работах, в частности [12]. В современной альфа- и бета-спектрометрии широ-

кое распространение получили спектрометры с неоднородными магнитными полями [1, 2, 5, 6, 10, 14]. В таких приборах может быть осуществлена двойная фокусировка пучков (объемная фокусировка в горизонтальном и вертикальном направлениях), что приводит к значительному повышению светосилы.

В данной работе для повышения точности определения энергии электронов применен β -спектрометр типа $\pi\sqrt{2}$ с $r_0 = 50$ см в диапазоне 0–10 кэВ, помимо традиционных ядерно-спектроскопических, использованы методы автоэмиссионной и Оже-спектроскопии.

Магнитный β -спектрометр с двойной фокусировкой на угол $\pi\sqrt{2}$

Для изучения электронных спектров распада радиоактивных ядер редкоземель-

ных элементов мы применили имеющийся магнитный β -спектрометр с двойной фокусировкой на угол $\pi\sqrt{2}$. Его основные характеристики следующие: радиус равновесной орбиты – 500 мм; приборное разрешение по импульсу – 0,05% при ширине источника $s = 1$ мм и приемной щели $w = 1$ и диафрагме, соответствующей телесному углу $\Omega = 0,26\%$ от 4π стерадиан.

В таких приборах может быть осуществлена двойная фокусировка пучков (объемная фокусировка в горизонтальном и вертикальном направлениях), что приводит к значительному повышению светосилы. Двойная фокусировка, в частности, происходит в осесимметричных полях со средней плоскостью, перпендикулярной к оси симметрии поля. Распределение напряженности отклоняющего магнитного поля подбирается так, что электроны с определенным значением энергии осциллируют около осевой траектории с радиусом r_0 как в горизонтальном, так и в вертикальном направлении, совершая так называемые бетатронные колебания. При этом формируются два изображения точечного источ-

ника: вертикальное, соответствующее углу поворота Φ_r (угол горизонтальной фокусировки), и горизонтальное, соответствующее углу поворота Φ_z (угол вертикальной фокусировки). При равенстве углов поворота $\Phi_r = \Phi_z = \Phi_{r,z}$ все частицы, вышедшие из точечного источника, вновь собираются в точку, т.е. осуществляется стигматическая фокусировка. Такая фокусировка реализуется, если в средней плоскости поле убывает по закону

$$H = H_0 \sqrt{\frac{r_0}{r}},$$

где $H_0 = H(r_0)$ – напряженность поля на осевой траектории, а r – расстояние от оси симметрии, причем $\Phi_{r,z} = \pi\sqrt{2} = 254^\circ 56'$. Электронно-оптическая схема бета-спектрометра представлена на рис. 1. В данной работе в спектрометре использовался источник электронов высотой 20 мм и шириной 0,5 мм и детектор на основе шеврона микроканальных пластин в насыщенном режиме. Общая площадь источника достигает 10 мм^2 .

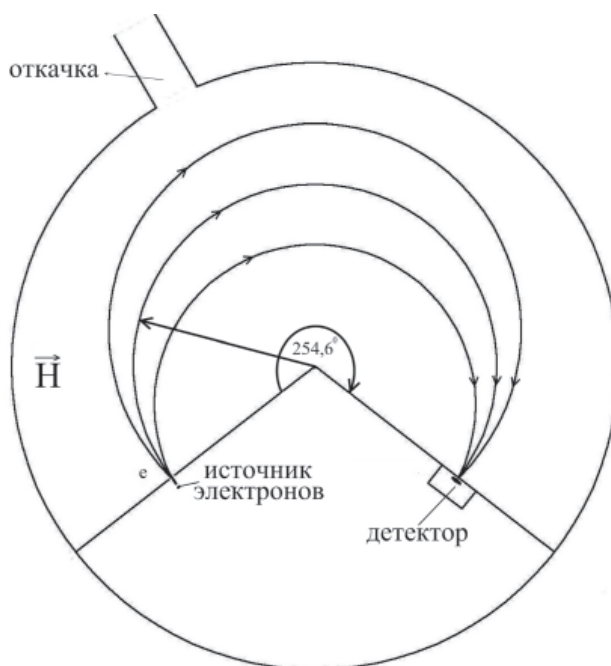


Рис. 1. Ионно-оптическая схема β -спектрометра $\pi\sqrt{2}$

Детектор имеет входное окно 2 мм^2 . Значительного снижения уровня фоновых срабатываний удалось достичь путем оптимизации формы амплитудного распределения импульсов с шеврона микроканальных пластин в насыщенном режиме как по величине зазоров, так и по значению потенциалов на них.

Реперы для калибровки β -спектрометров в низкоэнергетической области

Необходимость исследований в окрестности нулевой области спектров электронных излучений радионуклидов обусловила экспериментальную проверку характеристик спектрометра в диапазоне

5–30 кэВ с использованием подачи на источник потенциала смещения – как тормозящего, так и ускоряющего – в диапазоне от +3 до –11 кВ. Из литературных данных известно, что тормозящее поле уменьшает светосилу диспергирующей системы, а ускоряющее – её увеличивает. Проверка правильности передачи интенсивности по линиям эмиссионных пиков [8], а также по линиям M,N 8,41 и L, M 20,75 (^{169}Tm), M-, L-серий Оже и отношению K/L для перехода 78,64 кэВ (^{173}Yb) показала, что оптимальное соотношение между пропусканием излучения разделяющей плёнкой и изменением эффективного телесного угла достигается для электронов с энергией $E_e \geq 0,5$ кэВ при $V_{\text{уск}} = 6$ кВ, а для электронов с энергией $0,05$ кэВ $\leq E_e \leq 0,5$ кэВ при больших значениях $V_{\text{уск}}$ можно достаточно надёжно ввести поправки на изменение светосилы и пропускания в зависимости от энергии.

Для железных β -спектрометров, аналогичных используемому нами, в указанном энергетическом диапазоне характерны малые магнитные поля, азимутальные и радиальные распределения которых могут быть под влиянием множества факторов. Учесть корректно эти искажения может позволить лишь использование густой сети энергетических реперов.

При указанных потенциалах смещения и используемых в прецизионной β -спектрометрии размерах источников создаются напряжённости полей, достаточные для возникновения автоэлектронной эмиссии [4] с поверхности источника и электрически связанных с ним деталей, дающей начало излучению низкоэнергетических

серий (M-NN и L-MM) электронов Оже соответствующих элементов. Кроме того, к созданию подобных вакансий и в материалах вакуумной камеры, находящихся под нулевым потенциалом, может приводить их бомбардировка электронами из источника, причём она усиливается с подачей ускоряющего потенциала.

Основным энергетическим репером (с поправкой на работу выхода [13]) использована точка провала в автоэмиссионном спектре ^{173}Lu (рис. 2, где $V_{\text{уск}} = 9$ кэВ), отделяющая пики положительной энергии от значительно менее интенсивных пиков отрицательной энергии, обусловленных, по-видимому, туннелированием электронов из состояний ниже уровня Ферми сквозь потенциальный барьер. Этот провал соответствует нулю энергетической шкалы, что и можно использовать для калибровки низкоэнергетической части электронного спектра. Определённые таким способом значения энергии хорошо согласуются с данными, следующими из калибровочной зависимости [8] для нашего спектрометра, справедливой, по крайней мере, в диапазоне 5–2000 кэВ:

$$f/B\rho = 83,75 (1) + 4,5 (4)10^{-7} f,$$

где f – частота протонного резонанса в Гц в датчике измерения магнитного поля на равновесной орбите спектрометра; $B\rho$ соответствует этой частоте. Формула справедлива для стационарных процессов. Для нестационарных процессов результаты расчетов могут быть сомнительными, так как в их ходе меняется энергия связи электронов в силу образования новых структур.

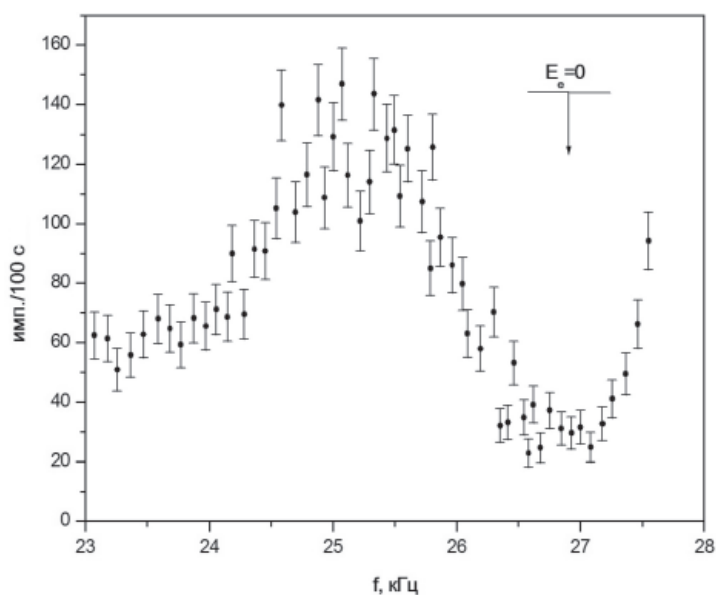


Рис. 2. Низкоэнергетическая часть электронного спектра ^{173}Lu

Вакуумная камера β -спектрометра и ряд деталей её оснастки изготовлены из латуни. Помимо меди и цинка в состав латуни входят как специально вводимые, так и примесные элементы. В эксперименте с ^{173}Lu по основному реперу была определена энергия наиболее сильного эмиссионного пика – 925 ± 15 эВ, которая отвечает энергии самой интенсивной Оже-линии серии L-MN меди (расчётное значение 920 эВ). Рис. 3 иллюстрирует электронный спектр рамки держателя источника без самого радиоактивного источника, снятый при $V_{\text{уск}} = 8,5$ кВ. Интен-

сивный пик соответствует $E_c = 920$ эВ. На его переднем склоне находятся Оже-линии ванадия и никеля. В серии других экспериментов с использованием этого значения энергии идентифицированы пики, отвечающие расчётным значениям энергии наиболее интенсивных компонентов L-MM-серий Оже-переходов в следующих элементах:

V (437 и 473 эВ), Cr (489 и 529 эВ),
Mn (589 эВ), Fe (598, 651 и 703 эВ),
Co (775 эВ), Ni (848 эВ), Zn (994 эВ)
и Ga (1070 эВ).

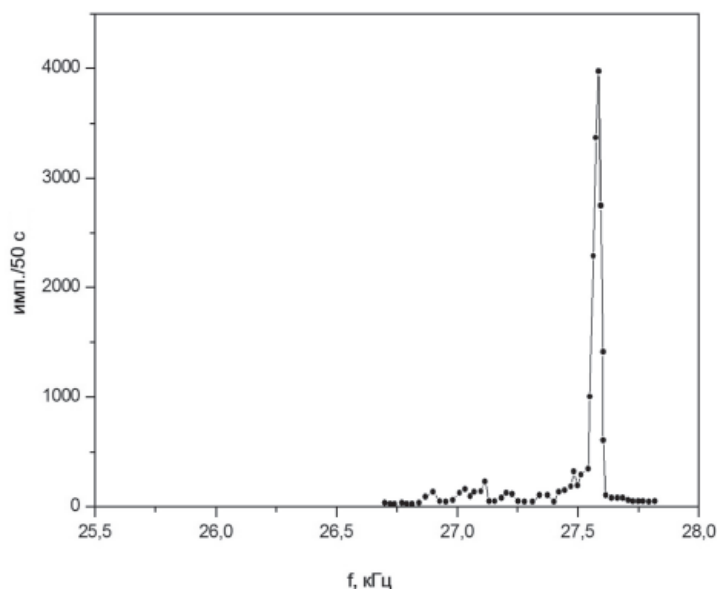


Рис. 3. Электронный спектр рамки без радиоактивного источника

В области 30–60 эВ имеется ряд достаточно интенсивных пиков серии Оже-линий M-NN, жестко связанных энергетически с соответствующими из перечисленных. Указанные пики можно, в принципе, использовать для энергетической калибровки в околонулевой области электронных спектров, получаемых на β -спектрометрах типа $\pi\sqrt{2}$, подобных нашему.

Необходимо, однако, иметь в виду, что в методическом отношении эта энергетическая область всё ещё таит в себе много неожиданностей при её исследовании ядерно-спектроскопическими методами.

Известно [4], что к числу факторов, определяющих стабильность автоэлектронной эмиссии металлов, относятся адсорбция атомов и молекул остаточных газов на поверхности эмиттеров и бомбардировка эмиттера положительными ионами остаточных газов, образующихся при ионизации газа автоэлектронами и ионами, летящими с положительно заряженных электродов. Именно поэтому, наверное, нами экспериментально наблюдалось в некоторых слу-

чаях существенное различие в картинах эмиссионного спектра (не только по интенсивности, но и по числу и энергетическому положению пиков), снятого с источником радиоактивности и идентичной неактивной полоской того же материала.

В камерах β -спектрометров, как правило, достижим относительно невысокий вакуум – 10^{-5} – 10^{-6} мм рт.ст. В парах вакуумного масла возможно содержание некоторых из металлов, входящих в состав латуни, а также – осаждение их на её поверхности. Этим и можно объяснить обнаруженную зависимость интенсивности отдельных пиков от продолжительности и степени откачки в камере спектрометра. Эмиссионные пики, формирующиеся из вторичных электронов с поверхности материалов эмиттеров, исследовались нами при распаде радионуклидов ^{109}Pd , $^{105, 110\text{m}, 111, 111\text{m}}\text{Ag}$, ^{137}Cs , $^{152, 152\text{m}}\text{Eu}$, ^{160}Tb и ^{173}Lu и с использованием на месте радиоактивных источников близких к их размерам нерадиоактивных полосок из различных материалов, в частности серебра. В пределах чувствительности нашего

эксперимента во всех случаях, кроме опытов с ^{137}Cs и неактивной полоской серебра, эмиссионные спектры хорошо воспроизводились в повторных экспериментах и даже при относительно невысоком вакууме не обнаруживали влияния на них адсорбции остаточных газов. И лишь в случае неактивного серебра и радиоактивного ^{137}Cs из-за особых адсорбционных свойств этих материалов наблюдались дополнительные (в каждом случае – свои) пики, неустойчивые во времени. По-видимому, дополнительные исследования помогут выявить и другие материалы с аналогичными адсорбционными свойствами.

По литературным данным, латунь – материал не вакуумный. Даже при сравнительно неглубоком ($\sim 10^{-4}$ мм рт.ст. и ниже) вакууме из латунных деталей выделяется цинк.

При этом частицы цинка распространяются не только по прямой, но и проникают во все полости и зазоры внутри камеры и оснастки даже на поверхности, обратной по отношению к источнику паров. И это свойственно всем типам латуни. Эта особенность поведения цинка латуни в вакууме, как нам удалось обнаружить экспериментально, обуславливает тем не менее неоднозначную зависимость интенсивностей отвечающих ему пиков от использованного радиоактивного источника. На рис. 4, где приведена низкоэнергетическая часть электронного спектра ^{137}Cs , снятая при $V_{\text{уск}} = 9,0$ кВ, просматриваются четыре чётко выделенных пика с энергиями (в эВ): 850 (Ni); 920 (Cu); 994 и 1017 (Zn). При работе с другими радиоактивными источниками столь интенсивных пиков цинка наблюдать не удавалось.

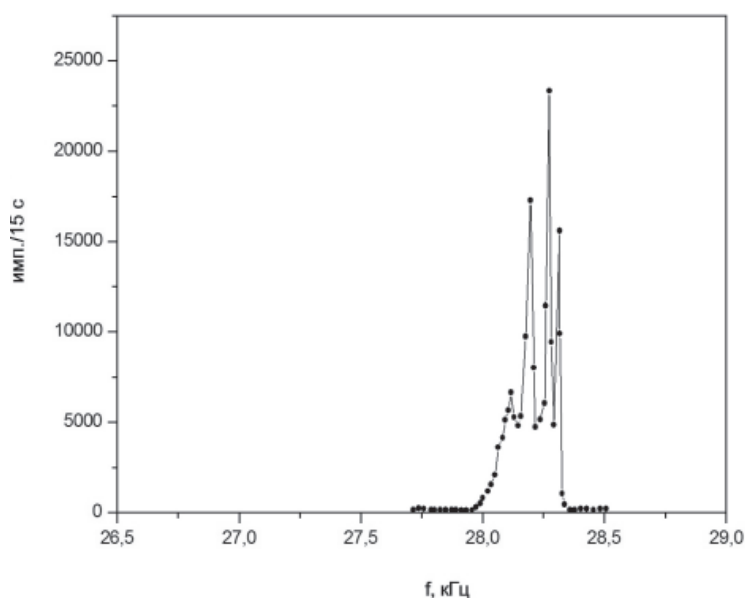


Рис. 4. Низкоэнергетическая часть электронного спектра

Обсуждаемый способ энергетической калибровки β -спектрометра позволил нам, в частности, идентифицировать пики впервые наблюдавшегося электронного спектра в околонулевой области энергии распада $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ($T_{1/2} = 252$ дн.). Они отнесены к М- и -N-линиям переходов 1,16 (3) кэВ типа E1 в ^{110}Ag (между состояниями 2^- ; 1,113 кэВ и 1^+ ; 0 кэВ) и 1,60 (10) кэВ типа M1 в ^{110}Co (между состояниями 2707,413 и 2705,682 кэВ).

Сочетание методов автоэмиссионной, Оже- и ядерной спектроскопии сделало возможным более глубокое понимание экспериментально обнаруженных нами сложных процессов неядерного происхождения в радиоактивном оксиде лотетция [8]. По-видимому, можно уверенно считать, что возможности этого комплексного подхода при исследовании

низкоэнергетической области электронного излучения далеко не исчерпываются. Следует указать ряд других его возможностей:

1. Узкие эмиссионные пики (без влияния на них неоднородностей по толщине, самих толщин источников, значительной естественной ширины атомного уровня в случае К-оболочки и т.д.) делают очень удобными их для определения приборного разрешения спектрометров в области малых магнитных полей.

2. После обнаружения новых материалов с адсорбционными свойствами, подобными свойствам серебра и цезия, усиливающими известные и стимулирующими проявление новых эмиссионных пиков, можно значительно расширить возможности надёжной калибровки спектрометров в околонулевой энергетической области.

3. Даже в современных экспериментальных условиях с учётом наших результатов можно повысить точность определения энергии в обсуждаемой области в 5–10 раз.

4. Существенно расширяются возможности обнаружения и интерпретации природы процессов неядерного происхождения в материалах источников радиоактивности.

Можно уверенно считать, что пределы точности информации, получаемой на широкоапертурных железных магнитных β -спектрометрах с двойной фокусировкой на угол $\rho\Omega$ [7], ещё не достигнуты, а возможности этих спектрометров далеко не исчерпаны. В частности, как уже отмечено, в области малых энергий может стать традиционным применение ядерно-спектроскопических методов в околонулевой области электронного спектра излучения (как ядерного, так и иного происхождения).

Закключение

Реализация оптимального соотношения между разрешением, светосилой и светимостью приближает возможности широкоапертурных железных магнитных бета-спектрометров с двойной фокусировкой на угол $\pi\sqrt{2}$ к возможностям лучших образцов аналогичных безжелезных спектрометров в области энергий 5–2000 кэВ. Несколько проигрывая в точности определения энергии, но превосходя по светосиле, широкоапертурные железные спектрометры обеспечивают высокую чувствительность для получения характеристик слабых переходов. Дальнейшему повышению точности получаемой на обоих типах приборов информации должно содействовать не только повышение качества приготовления радиоактивных источников, но и детальное понимание происходящих в них процессов. Наблюдаемая реализация фазового перехода диэлектрик – сегнетоэлектрик в радиоактивных оксидах лютеция приводит к образованию электрических дипольных торoidalных моментов, что в свою очередь может вести к образованию торoidalных квадрупольных в этой среде. Эти проявления сверхсильных магнитных полей, обусловленных полным разрушением N-оболочки, увеличивает вероятность образования и проявления торoidalных квадрупольных в радиоактивных оксидах лютеция. Все это позволяет утверждать, что нами для решения поставленных задач выбрана весьма эффективная и продуктивная экспериментальная методика, заслуживающая дальнейшего усовершенствования и расширения применения.

Список литературы

1. Баранов С.А. и др. Большой α -спектрометр с двойной фокусировкой // Изв. АН СССР. Сер. физ. – 1959. – Т. 23, № 12. – С. 1402–1410.
2. Баранов С.А., Малов А.Ф., Шлягин К.Н. Бета-спектрометр с двойной фокусировкой // ПТЭ. – 1956. – № 1. – С. 3–12.
3. Булгаков В.В. и др. Исследование распада ^{181}Hf // Изв. АН СССР. Сер. физ. – 1980. – Т. 52. – С. 32.

4. Елинсон М.И., Васильев Г.Ф. Автоэлектронная эмиссия. – М.: Гос. Изд. физ.-мат. литературы, 1958. – 134 с.

5. Зеленков А.Г. Некоторые элементы расчета α -спектрографа с двойной фокусировкой ($a_0 = 1/8$) // Изв. АН СССР. Сер. физ. – 1959. – Т. 23, № 12. – С. 1411–1415.

6. Зигбан К. Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия. – М., 1969. – С. 96–217.

7. Карташов В.М., Оборовский А.И., Троицкая А.Г. Пределы точности информации, получаемой на β -спектрометрах $\rho\Omega$ ($\rho_0 = 50$ см) в области электронных спектров 5–2000 кэВ // Вопросы точности ядерной спектроскопии. – Вильнюс: Институт физики АН Литовской ССР, 1988. – С. 3.

8. Карташов В.М., Оборовский А.И., Троицкая А.Г. Учет влияния процессов, происходящих в материалах источников, на прецизионные исследования электронного излучения ядерного распада // Вопросы точности ядерной спектроскопии. – Вильнюс: Институт физики Литовской АН, 1990. – С. 3.

9. Карташов В.М., Оборовский А.И., Троицкая А.Г. Характеристики переходов 963,385 и 964,058 при распаде ^{152}Eu // Изв. АН СССР. Сер. физ. – 1990. – Т. 54. – С. 1798.

10. Карташов В.М. и др. β -Спектрометр с двойной фокусировкой с высоким разрешением // Изв. АН СССР. Сер. физ. – 1968. – Т. 32, № 4. – С. 682–689.

11. Ковригин О.Д., Латышев Г.Д. Спектрометр с двойной фокусировкой. – Алма-Ата, 1962. – 48 с.

12. Козлов И.Г. Современные проблемы электронной спектроскопии. – М.: Атомиздат, 1978. – 248 с.

13. Фоменко В.С. Эмиссионные свойства материалов. – Киев: Наукова думка, 1981. – 165 с.

14. Mladjenovic M. Development of magnetic b-ray spectroscopy. – Berlin. Heidelberg. – New York: 1976. – 282 p.

References

1. Baranov S.A. Bolshoi α -spektrometr s dvoimoi fokusirovkoi // Izv. ANSSSR. Ser.fiz. 1959. T. 23, no. 12. pp. 1402–1410.
2. Baranov S.A., Malov A.F., Shlyagin K.N. β -spektrometr s dvoimoi fokusirovkoi // PTE. 1956. no. 1. C. 3–12.
3. Bulgakov V.V. Issledovaniya raspada ^{181}Hf // Izv. ANSSSR. Ser.fiz. 1980. T. 52. pp. 32.
4. Elinson M.I., Vasilev G.F. Avtoelektronnaya emissiya. M.: Gos.Izd.fiz.-mat. literatury, 1958, 134 p.
5. Zelenkov A.G. Nekotorye elementy rasscheta α -spektrografa s dvoimoi fokusirovkoi ($a_0 = 1/8$) // Izv. ANSSSR. Ser.fiz. 1959. T. 23, no. 12. pp. 1411–1415.
6. Zigban K. α -, β -, γ -spektrskopiya. Moskva, 1969. pp. 96–217.
7. Kartashov V.M., Oborovskiy A.I., Troitskaya A.G. Predely tochnosti informatsiy, poluchaemoi na β -spektrometrakh $\rho\Omega$ ($\rho_0 = 50\text{sm}$) v oblasti electronnykh spectrov 5–200keV // Voprosy tochnosti yadernoi spektroskopii. Vilnus: Institut fiziki AN Litovskoi SSR, 1988, pp. 3.
8. Kartashov V.M., Oborovskiy A.I., Troitskaya A.G. Uchet vliyaniya protsesov, proiskhodyaschih v materialakh istochnikov, na pretsezionnye issledovaniya elektronnoho izlucheniya yadernogo raspada // Voprosy tochnosti yadernoi spektroskopii. Vilnus: Institut fiziki AN Litovskoi SSR, 1990, pp. 3.
9. Kartashov V.M., Oborovskiy A.I., Troitskaya A.G. Kharakteristiki perekhodov 963,385 i 964,058 pri raspade ^{152}Eu // Izv. ANSSSR. Ser.fiz. 1990. T. 54. pp. 1798.
10. Kartashov V.M. β -spektrometr s dvoimoi fokusirovkoi s vysokim razresheniem // Izv. ANSSSR. Ser.fiz. 1968. T. 32, no. 4. pp. 682–689.
11. Kovrigin O.D., Latyshev G.D. Spektrometr s dvoimoi fokusirovkoi. Almaty. 1962. 48 p.
12. Kozlov I.G. Sovremennye problemy elektronnoi spektroskopii. Moskva, Atomizdat, 1978. 248 p.
13. Fomenko V.S. Emissionnyye svoystva materialov. Kiev: Naukova dumka. 1981. 165 p.
14. Mladjenovic M. Development of magnetic b-ray spectroscopy. Berlin. Heidelberg. New York: 1976. 282 p.

Рецензенты:

Кабулов А.Б., д.ф.-м.н., профессор, кафедра «Теоретической и экспериментальной физики», Институт математики, физики и информатики, Казахский национальный педагогический университет имени Абая, г. Алматы;
Тусеев Т.Т., д.ф.-м.н., профессор, кафедра «Робототехника и технические средства автоматизации», Институт информационных и телекоммуникационных технологий, Казахский национальный технический университет имени К.И. Сатпаева, г. Алматы.

Работа поступила в редакцию 21.05.2014.