

Изготовление и исследование структуры гамма-источника на основе ^{109}Cd , внедренного в монокристалл серебра

В. Г. АЛПАТОВ, Г. Е. БИЗИНА, А. В. ДАВЫДОВ, Г. Р. КАРТАШОВ, А. А. САДОВСКИЙ

Описана методика изготовления γ -источников на основе ^{109}Cd , введенного в монокристалл серебра с помощью термодиффузии. Источник предназначен для экспериментов по мессбауэровскому возбуждению долгоживущего изомерного состояния ^{109}Ag с энергией 88 кэВ. Дано описание двух неразрушающих методов определения среднего значения глубины залегания внедренных атомов ^{109}Cd . Один из методов носит универсальный характер и может применяться для изучения диффузии широкого класса радиоактивных атомов. Другой метод пригоден только для изучения краевых распределений радиоактивного диффузанта.

Одно из наиболее заманчивых, но и крайне трудных применений эффекта Мессбауэра, связано с γ -резонансным возбуждением долгоживущих изомерных состояний ядер. Несмотря на то, что первые успешные опыты в этом направлении были выполнены еще в 1962—63 гг. [1], до сих пор не достигнуто существенного прогресса в подобных исследованиях. Подробный анализ причин, затрудняющих наблюдения данного процесса, а также некоторых направлений его исследований приводится в [2]. К настоящему времени, кроме сообщения [1] о возбуждении ядер ^{107}Ag имеются публикации и об экспериментах с ^{109}Ag при использовании в качестве γ -источников радиоактивных изотопов ^{109}Pd [3] и ^{109}Cd [4—6]. Авторы работ [1—3] развивали методику, основанную на облучении первоначально неактивного образца γ -квантами сильного источника. Облучение шло при низкой температуре, а измерение возникшей γ -активности резонансного поглотителя осуществляли в условиях низкого γ -фона. Этого достигали перемещением поглотителя или источника за достаточной толщины слой радиационной защиты, что удавалось сделать благодаря большому среднему времени жизни возбужденных ядер поглотителя (около 1 мин для указанных изотопов серебра).

В [4] применили иной метод. Изготовили γ -источник термодиффузионным внедрением радиоактивного ^{109}Cd в монокристаллическую пластину серебра. В таком γ -источнике при его охлаждении должно происходить мессбауэровское самопоглощение γ -квантов с энергией 88 кэВ ядрами ^{109}Ag . В [4] указано, что самопоглощение наблюдалось и составило 0,1%. Столь ооольшой эффект γ -резонансного самопоглощения мог бы наблюдаться лишь при условии, что γ -линия 88 кэВ уширяется в веществе источника не более чем в 30 раз по отношению к естественной ширине изомерного состояния. В то же время теоретические оценки [1, 2] и результаты [1] свидетельствуют о том, что это уширение составляет не менее 10^5 — 10^6 раз. Эти обстоятельства, а также отсутствие в [4] сколько-нибудь убедительных контрольных опытов, вызывали сомнения в правильности истолкования результатов [4]. В нашей лаборатории после появления публикации [4] были выполнены опыты по изучению влияния температуры на поглощение в серебре γ -квантов с энергиями 88 кэВ (^{109}Cd) и 86,5 кэВ (^{156}Eu) [7]. Эта работа имела цель выяснить, нет ли каких-либо аномалий в поглощении γ -квантов серебром в интервале температур 4,2—77 К, которые могли бы быть связаны, например, с ранее неизвестным фазовым переходом в серебре, меняющим его плотность. Однако с погрешностью порядка 0,01% таких аномалий не обнаружилось для обеих γ -линий, одна из которых является резонансной для ядер ^{109}Ag , а другая нет. Опыт [7] нельзя считать прямой проверкой [4], так как он проведен с поликристаллическим серебром, а не с монокристаллом. Радиоактивный ^{109}Cd в этом серебре образовался в результате циклотронного облучения протонами. Кроме того, γ -кванты проходили сквозь серебро в вертикальном направлении, и эффективная длина резонансного поглощения определялась соотношением ширины резонанса и гравитационного красного смещения энергии фотонов (для 30-кратного уширения линии 88 кэВ смещение на одну ширину резонанса происходит на отрезке около 30 мкм по вертикали).

В появившихся позже публикациях [5, 6] сообщалось о подтверждении эффекта, наблюдавшегося в [4]. В этих ра-

ботах, кроме γ -квантов, регистрировали рентгеновское излучение ^{109}Ag . Поскольку после резонансного поглощения γ -кванта разрядка возбужденного ядра идет в основном через процесс внутренней конверсии, то наличие резонансного поглощения приводит к увеличению интенсивности рентгеновского излучения. Авторы [5, 6] измеряли отношение интенсивностей рентгеновского и γ -излучений ^{109}Ag , что кроме некоторого увеличения ожидаемого эффекта должно было привести к исключению влияния геометрических факторов (деформации установки) на результат измерений.

Применение в указанных работах γ -источника в виде монокристалла серебра с внедренным ^{109}Cd несомненно соответствует перспективному направлению развития опытов по γ -резонансному возбуждению долгоживущих изомерных состояний ядер независимо от того, пойдут ли они по пути работ [1, 3] или [4—6]. О необходимости изготовления подобных γ -источников указывалось ранее в [2]. Занимаясь длительное время проблемой γ -резонансного возбуждения ядерных изомеров, мы тем не менее не нашли разумных объяснений столь малого уширения резонанса, с которым связывают результаты своих опытов авторы [4—6]. Однако, если ситуация действительно такова, она должна привести к исключительно важным следствиям. Поэтому мы приступили к опытам с монокристаллическим γ -источником и в данной статье описываем примененную нами процедуру изготовления такого источника и методы определения глубины залегания в нем радиоактивного кадмия.

Для изготовления γ -источника использовали монокристалл серебра, выращенный в Институте физики твердого тела (Черноголовка) из металла высокой чистоты (отношение удельных сопротивлений при 300 и 4,2 К равно 12000). Кристалл имел вид цилиндра диаметром 26 мм; ось цилиндра соответствовала кристаллическому направлению (100). От цилиндра перпендикулярно оси отрезали на электроэрозсионном станке шайбу толщиной 1 мм и удалили с нее слой нарушенной при резке поверхностной структуры травлением в водном растворе CrO_3 и CaCl_2 , взятых соответственно в количествах 23,0 и 6,5% к массе раствора [8]. Слегка изогнувшуюся при отрезании пластину выпрямили отжигом при 700°C в течение 3 ч. После отжига на поверхности шайбы были выявлены два крупных монокристалла, т. е. отжиг привел к перекристаллизации.

Радиоактивный кадмий наносили на одну из плоских поверхностей шайбы электролизом во фторопластовой ванне с платиновым анодом. Электролит представлял собой одно-нормальный раствор HCl , содержащий ^{109}Cd в концентрации, соответствующей 10^{-4} молярного раствора. Для предотвращения выделения на катоде водорода, препятствующего осаждению кадмия, рН раствора поддерживали на уровне 8—9 добавлением раствора аммиака. Толщина высаженного кадмия составляла по расчету 200 Å.

Диффузионный отжиг монокристаллической пластины проводили в кварцевой ампуле малого объема, откачанной до 10^{-4} Торр и запаянной. После стадии разогрева со скоростью 2°C/мин от 20 до 750°C ампула находилась при этой температуре в течение 91,4 ч, причем температуру поддерживали с погрешностью 0,5°C. Видимых следов рекристаллизации серебра после отжига обнаружено не было. Измерение γ -излучения пластинки показали, что несмотря на одностороннее нанесение кадмия он продиффундировал в серебро одинаковым образом со всех сторон. Это указывает

на то, что диффузия шла из паровой фазы. Гамма-активность источника составила 5 мКи. Более подробно технология изготовления источника описана в [9].

В [10, 11] убедительно показано, что профиль распределения диффундирующей составляющей по глубине в случае металлов (при концентрациях введенных атомов 10^{-2} %) имеет вид

$$u(z) \sim \exp[-(z/\bar{z})^2], \quad (1)$$

где $\bar{z} = \sqrt{Dt}$ — параметр, характеризующий среднюю глубину проникновения диффундирующих атомов в матрицу; D — коэффициент диффузии для данной пары металлов при определенной температуре; t — продолжительность процесса диффузии. Таким образом, задача сводится к определению одного параметра в модельном распределении (1).

Нами были применены два независимых неразрушающих способа измерения средней глубины диффузионного проникновения атомов кадмия в серебро:

метод сравнения интенсивностей рентгеновского и γ -излучений и метод щелевого коллиматора.

Метод сравнения интенсивностей рентгеновского и γ -излучений.

В спектре излучений ^{109}Cd присутствуют две энергетические группы, для которых коэффициенты поглощения в серебре сильно различаются. Гамма-кванты с энергией 88 кэВ поглощаются с линейным коэффициентом поглощения $\mu_\gamma = 119,3 \text{ см}^{-1}$, а рентгеновское излучение, сопровождающее процессы внутренней конверсии γ -лучей, в частности, линия с энергией 22,1 кэВ — с коэффициентом поглощения 145 см^{-1} . Эти цифры получены на основе таблиц [12]. Из-за различия в поглощении двух видов излучения отношение интенсивностей γ -линии и выбранной линии характеристического рентгеновского излучения зависит от вида распределения радиоактивных атомов по глубине источника. Если в источнике в единицу времени образуется J_γ γ -квантов и J_x рентгеновских фотонов нужной энергии, то при соответствующих эффективностях детектора ϵ_γ и ϵ_x будут зарегистрированы следующие числа отсчетов обоих видов излучений:

$$P_\gamma = J_\gamma \epsilon_\gamma \Omega \int_0^d e^{-\mu_\gamma z} u(z) dz; \quad (2)$$

$$P_x = J_x \epsilon_x \Omega \int_0^d e^{-\mu_x z} u(z) dz. \quad (3)$$

Здесь Ω — относительный телесный угол, в котором детектор регистрирует излучение источника; d — толщина источника, z — направление, обратное тому, в котором проходят фотоны сквозь источник к детектору; $u(z)$ — распределение радиоактивных атомов по глубине z .

Отношение интенсивностей двух видов излучений

$$\frac{P_x}{P_\gamma} = \frac{J_x \epsilon_x}{J_\gamma \epsilon_\gamma} \frac{I_x}{I_\gamma}, \quad (4)$$

где символами I_γ и I_x обозначены интегралы, входящие в (2) и (3).

Дополнительный вклад в интенсивность рентгеновской линии дает фотопоглощение атомами серебра γ -квантов с энергией 88 кэВ. С учетом этого (4) приобретает вид

$$\frac{P_x}{P_\gamma} = \frac{J_x \epsilon_x}{J_\gamma \epsilon_\gamma} (1 + \kappa) \frac{I_x}{I_\gamma}. \quad (5)$$

Расчеты дали для различных значений параметра средней

\bar{z} , мкм	50	150	300
κ	0,012	0,017	0,021

глубины диффузии z значения поправки κ , приведенные в таблице.

При малой толщине источника поглощением обоих видов излучения в нем можно пренебречь. Отношение интенсивностей двух видов фотонов в опыте с тонким источником выразится формулой

$$R_T = \frac{P_x}{P_\gamma} = \frac{J_x \epsilon_x}{J_\gamma \epsilon_\gamma}. \quad (6)$$

Тонкий источник имел вид кружка из фильтровальной бумаги диаметром, как серебряная шайба, пропитанного раствором соли радиоактивного ^{109}Cd и высушенного. Все

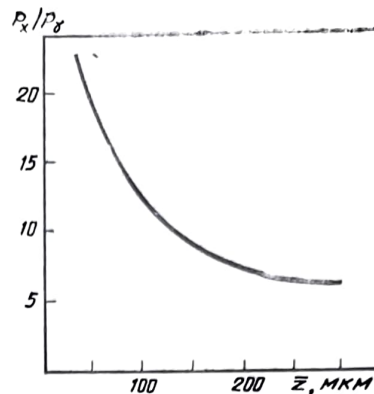


Рис. 1. Зависимость отношения интенсивностей регистрируемых детектором рентгеновской и γ -линий с энергиями соответственно 22,1 и 88 кэВ от параметра z , характеризующего среднюю глубину проникновения атомов кадмия в серебро.

измерения как с бумажным γ -источником, так и с серебряной пластиной выполнены при помощи германиевого рентгеновского детектора площадью 20 мм^2 и толщиной 5 мм с электронным трактом амплитудного анализатора Nokia LP 4900 В. Источники помещали над детектором на таком расстоянии, что непараллельностью траекторий γ -квантов, падающих на детектор, можно было пренебречь.

Из (4) и (6) следует

$$P_x/P_\gamma = R_T I_x/I_\gamma. \quad (7)$$

Используя (1) и (7), можно вычислить зависимость P_x/P_γ от параметра $z = \sqrt{Dt}$. График этой зависимости приведен на рис. 1, причем в результаты расчета введена поправка κ в соответствии с (5). Экспериментально измеренное значение отношения рентгеновских и γ -лучей равно $10,1 \pm 0,1$, что соответствует $z = 125 \pm 10 \text{ мкм}$. Отметим, что в [5] глубину диффузии кадмия в серебро измеряли аналогичным образом.

Метод щелевого коллиматора.

Этот метод основан на сканировании шайбы-источника узкой коллиматорной щелью в направлении от края к центру и измерении скорости счета γ -квантов, проходящих через щель, германиевым детектором. Число отсчетов зависит при этом от распределения атомов ^{109}Cd в серебре над щелью

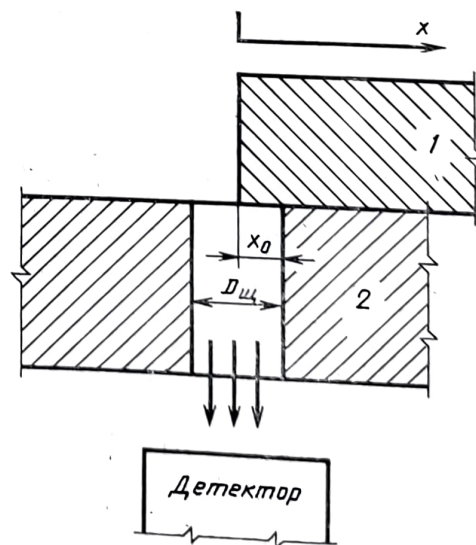


Рис. 2. Схема опыта по изучению распределения радиоактивного ^{109}Cd вблизи края монокристаллического серебряного γ -источника: 1 — серебряный монокристалл, который можно перемещать мимо щелевого коллиматора; 2 — свинцовая пластинка со щелью; $D_{щ} = 280 \pm 2 \text{ мкм}$

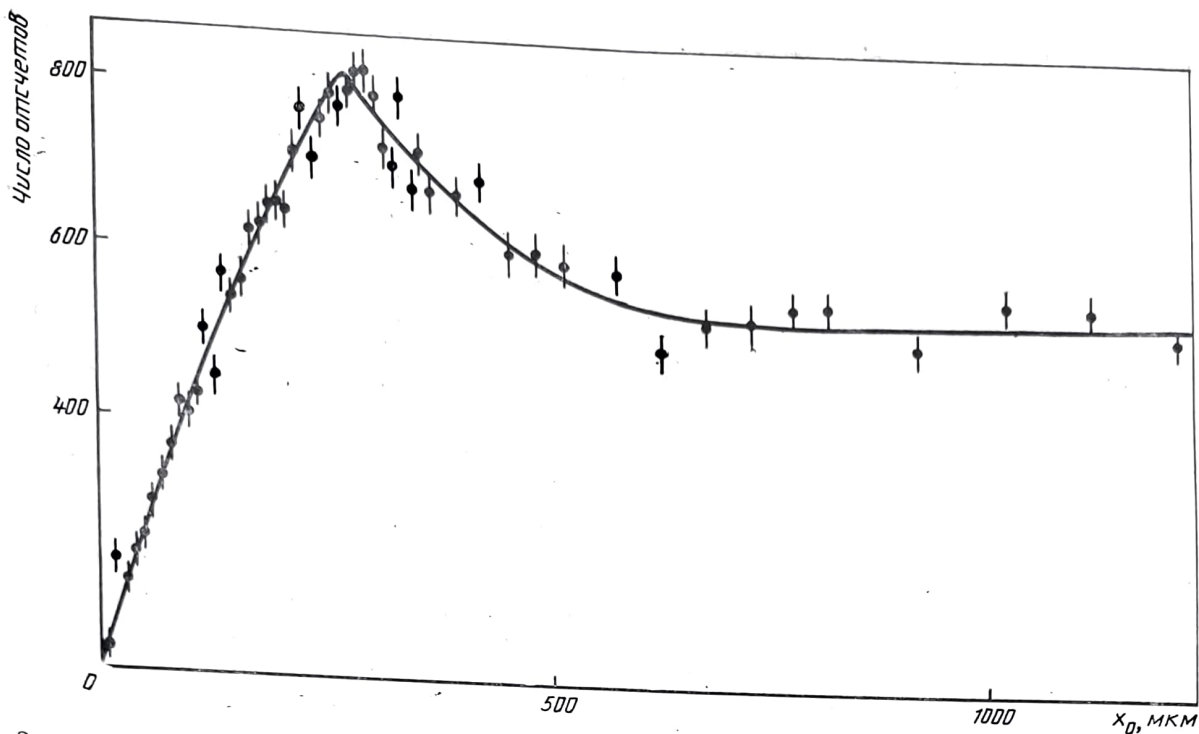


Рис. 3. Зависимость скорости счета γ -квантов, прошедших щелевой коллиматор, от расстояния между краем монокристалла и правым (см. рис. 2) краем щели. Точками представлены данные измерений с их статистическими погрешностями. Сплошной линией показаны результаты оптимального варианта расчета.

и от коэффициента поглощения γ -квантов в серебре. Щель представляла собой отрезок дуги окружности того же радиуса, что и шайба, шириной $D_{щ} = 280 \pm 2$ мкм. Она была прорезана в свинцовой пластине толщиной 10 мм. Сканирование проводили с шагом 10 ± 2 мкм на длине 1500 мкм. Схема сканирующего устройства показана на рис. 2.

Чтобы связать зависимость скорости счета детектора от положения щели с параметрами распределения диффузанта в серебре, применена модель двумерного распределения продиффундировавших атомов. Предполагалось, что вследствие кубической структуры монокристалла серебра коэффициенты диффузии по двум ортогональным направлениям одинаковы, и поэтому распределения кадмия в серебре одинаковы в перпендикулярном к плоским поверхностям шайбы направлении и в радиальном направлении от боковой цилиндрической поверхности шайбы к центру. Далее предположили, что линии равных концентраций диффузанта параллельны границам шайбы, при этом приближенно считали, что линии равных концентраций испытывают излом под углом 90° в области смыкания плоской и боковой цилиндрической поверхностей шайбы (в реальном распределении изломы имеют, конечно, плавный сглаженный характер). Для вычисления функции $F(x_0)$, описывающей зависимость числа отсчетов от положения коллимирующей щели (x_0 — положение правого края щели, см. рис. 2), профили распределений диффузанта для обоих взаимно перпендикулярных направлений приняты имеющими вид (1) с одинаковыми для обоих направлений параметрами z . Из-за наличия излома фронта диффузии расчетная зависимость числа отсчетов от положения щели имеет кусочно-гладкий характер.

Результаты опытов даны на рис. 3, где сплошной линией показана оптимальным образом описывающая их функция $F(x_0)$. Критерий χ^2 для этого варианта аппроксимации данных опытов составляет 1,52 на одну степень свободы. Завышенность значения χ^2 по сравнению с ожидаемым значением 1,0 связана с упомянутым выше несовершенством принятой модели диффузионного распределения, а также со сравнительно невысокой точностью определения шага сканирования (при недостаточно высокой точности определения суммарного пути перемещения источника мимо щели), что внесло соответствующую неопределенность в положение экспериментальных точек вдоль оси абсцисс. Приведенной на рис. 3 кривой $F(x_0)$ соответствует $z = 125,5 \pm 10$ мкм. Таким

образом, оба примененных метода контроля глубины диффузии дали хорошо согласующиеся между собой результаты, которые к тому же не противоречат предварительной оценке средней глубины диффузии.

Высокая степень неоднородности концентрации кадмия по глубине, неизбежная при термодиффузионном внедрении, может привести к неоднородному распределению изомерных сдвигов между линиями испускания и поглощения для ядер, находящихся на разной глубине в серебре, если регистрируемые γ -кванты проходят сквозь толщу кристалла перпендикулярно фронту диффузии кадмия. Это может вызывать уширение резонанса, т. е. уменьшение сечения резонансного поглощения γ -квантов. Однако есть возможность избежать от этого неприятного обстоятельства, воспользовавшись следующей, в принципе несложной, технологией изготовления γ -источника. Последовательные этапы технологической цепочки иллюстрируются рис. 4. После завершения этапа диффузии кадмия плоская монокристаллическая пластинка серебра разрезается перпендикулярно фронту диффузии кадмия на ряд полосок, ширина которых выбирается равной толщине будущего γ -источника. Затем каждая полоска поворачивается на угол 90° и из повернутых полосок собирается плоская конструкция. Если теперь регистрировать γ -кванты, выходящие из такого источника перпендикулярно общей плоскости повернутых полосок, то все эти γ -кванты будут проходить сквозь кристалл параллельно плоскости фронта диффузии кадмия. Хотя концентрация кадмия в серебре сильно меняется в промежутке между стыками полосок, каждый γ -квант, регистрируемый достаточно удаленным детектором, идет в серебре по направлению, вдоль которого концентрация кадмия постоянна. Одновременно достигается возможность изготовления γ -источников с толщиной слоя, содержащего кадмий, намного большей, чем можно достичь термодиффузией за разумное время. А это должно существенно повысить чувствительность экспериментального устройства к малым эффектам самопоглощения γ -квантов.

В заключение отметим, что описанная технология дает возможность сравнительно просто изготавливать монокристаллические γ -источники на основе ^{109}Cd в серебре. Обнаруженные особенности внедрения кадмия в серебро требуют в тех случаях, когда необходимо одностороннее внедрение кадмия, принятия особых мер по защите других поверхностей монокристалла от проникновения сквозь них кадмия

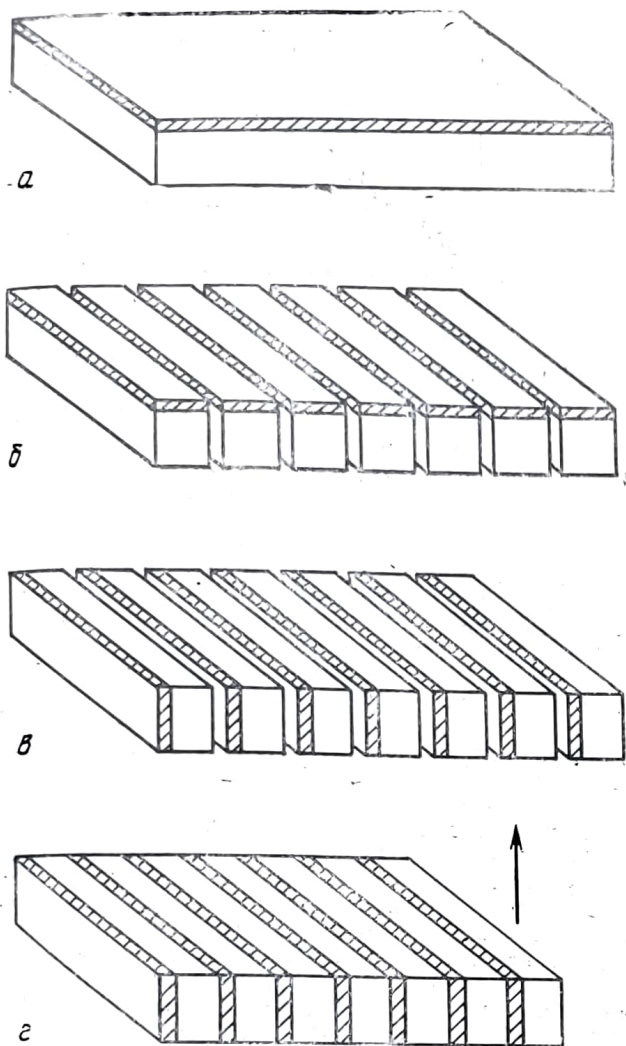


Рис. 4. Последовательность операций при изготовлении γ -источников «развернутого» типа (заштрихованый слой с радиоактивными атомами): *а* — исходная пластинка из монокристалла серебра; *б* — пластинка разрезана на полоски; *в* — каждая пластинка повернута на угол 90° ; *г* — из повернутых полосок сложена новая пластинка, стрелкой показано направление, в котором должны регистрироваться γ -кванты при диффузионном отжиге. Из двух примененных независимых методов определения средней глубины диффузии, первый (метод сравнения интенсивностей рентгеновского и

γ -излучений) имеет универсальный характер и может быть применен к изучению диффузии широкого класса радиоактивных атомов. Второй метод специфичен и пригоден только для изучения краевых распределений радиоактивного диффузанта в тех случаях, когда диффузия осуществляется в двух направлениях, образующих между собой угол 60° — 90° .

Авторы выражают свою признательность В. Н. Кайгородову (Институт физики металлов УНЦ АН РАН), подробно ознакомившему со своими работами по изучению диффузии кадмия в серебре; Н. В. Личковой и Р. Н. Николаеву (Институт проблем микроэлектроники и особо чистых веществ), которые изготовили монокристалл серебра, использовавшийся в данной работе; сотрудникам Института теоретической и экспериментальной физики С. Н. Зубкову, А. М. Котову, С. Е. Старостину за помощь в проведении экспериментов, а также М. М. Короткову и Г. В. Костиной за обсуждение различных аспектов работы.

ЛИТЕРАТУРА

- Бизина Г. Е., Беда А. Г., Бургов Н. А., Давыдов А. В. // ЖЭТФ. — 1963. — Т. 45 — № 5(11). — С. 1408.
- Беда А. Г., Бизина Г. Е., Давыдов А. В. // Проблемы ядерной физики и физики элементарных частиц. — М.: Наука, 1975. — С. 209.
- Алпатов В. Г. и др. // Proc. Intern. Conf. on Mössbauer Spectroscopy. — Bucharest, Romania. — 1977. — V. 1. — P. 43.
- Wildner W., Gonzer U. // J. de Physique, Colloque C2, Supplement au n° 3. — 1979. — P. C2-47—C2-48.
- Taylor R. D., Hoy G. R. // SPIE. Short and Ultrashort Wavelengths Lasers. — 1988. — V. 875. — P. 126.
- Hoy G. R., Taylor R. D. // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. — 1988. — V. 40. — N 6. — P. 763.
- Алпатов В. Г. и др. Исследование температурной зависимости поглощения гамма-лучей с энергией 88 и 86,5 кэВ в серебре / ИТЭФ. — М., 1984. — Препринт № 130.
- А. с. 998583 СССР / В. Н. Кайгородов, А. В. Балдин, В. Л. Арбузов и др. // Открытия. Изобретения, 1983. — № 7. — С. 176.
- Бизина Г. Е., Давыдов А. В., Карташов Г. Р., Садовский А. А. Изготовление и исследование свойств гамма-источника на основе ^{109}Cd , внедренного в монокристалл серебра / ИТЭФ. — М., 1990. — Препринт № 15—90.
- Кайгородов В. Н., Клоцман С. М., Тимофеев А. Н., Трахтенберг И. Ш. // Физика металлов и металловедение. — 1969. — Т. 27. — С. 1048.
- Tomizuka C. T., Sliifkin L. // Phys. Rev. — 1954. — V. 96. — N 3. — P. 610.
- Сторм Э., Исраэль Х. Сечения взаимодействия гамма-излучения. — М.: Атомиздат, 1973. — С. 122.