

ГАММА-СПЕКТРОСКОПИЯ НАНОМЕТРОВЫХ СЛОЕВ ГАДОЛИНИЯ В РЕЖИМЕ РЕЗОНАНСНО-УСИЛЕННЫХ СТОЯЧИХ НЕЙТРОННЫХ ВОЛН

*Ю. Н. Хайдуков^{а,б,1}, В. Д. Жакетов^{а,б,с}, Д. С. Корольков^д,
В. В. Проглядо^е, М. А. Миляев^е, Е. А. Кравцов^е, А. М. Лидер^{жс},
Ю. В. Никитенко^б, В. Л. Аксенов^б*

^а Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова, Москва

^б Max Planck Institute for Solid State Research, Stuttgart, Germany

^с Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

^д Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет),
Долгопрудный, Россия

^е Institut Dr. Foerster GmbH & Co, Reutlingen, Germany

^{жс} Институт физики металлов им. М. Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия

^{жс} Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия

Экспериментально показана возможность детектирования гамма-квантов в нейтронном эксперименте в режиме резонансно-усиленных стоячих волн (РУСВ) от пленки гадолиния толщиной 1 нм, помещенной в резонаторную структуру, состоящую из 50-нм слоя ниобия на сапфировой подложке и покрытую 10-нм пленкой тантал-медного сплава. Масса гадолиния, использованного в эксперименте, составляла 2 мкг, что в 25 раз меньше, чем в эксперименте Х. Жанга и др. (Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. P. 3044). Количественный расчет показывает, что условия эксперимента позволяют детектировать гамма-сигнал в волноводном резонансе от гадолиния массой 40 нг. Это делает РУСВ гамма-спектрометрию мощным методом характеристики гетероструктур с ультратонкими слоями гадолиния. В частности, метод может быть использован при исследовании кинетики взаимодействия водорода с нанометровыми пленками, в которых тонкий слой гадолиния будет использоваться в качестве слоя-метки.

This work experimentally demonstrates the possibility of detecting gamma rays in neutron experiment in the mode of resonantly enhanced standing waves (RESW) from a gadolinium film 1 nm thick placed in a resonator structure consisting of a 50 nm niobium layer on a sapphire substrate and coated with a 10 nm film of tantalum–copper alloy. The mass of gadolinium used in the experiment was 2 μg , which is 25 times less than in the experiment of H. Zhang et al. (Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. P. 3044). Quantitative calculation shows that experimental conditions make it possible to detect a gamma signal in waveguide resonance from gadolinium weighing 40 ng. This makes RESW gamma spectrometry a powerful characterization method of heterostructures with ultrathin layers of gadolinium. In particular, the method can be used when studying the kinetics of interaction of hydrogen with nanometer films in which thin gadolinium layer will be used as a label layer.

PACS: 82.80.Ej; 61.05.fj; 27.70.+q

¹E-mail: khaiduk@gmail.com

Благодаря наличию уникальных ядерных и магнитных свойств гадолиний широко используется в фундаментальных исследованиях и промышленных приложениях (электроника, ядерная энергетика, медицинская и лазерная техника и т. п.). Сильная локализация магнитного момента атомов гадолиния позволяет стабилизировать ферромагнетизм даже в ультратонких слоях Gd с толщинами порядка 1 нм. Это делает гетероструктуры с гадолиниевыми слоями интересными объектами для изучения в различных направлениях. Так, в наших работах [1, 2] была показана возможность создавать гибридные сверхпроводяще-ферромагнитные гетероструктуры на основе сверхпроводящего ниобия и ферромагнитного гадолиния с хорошими структурными, магнитными и сверхпроводящими свойствами. Также большой интерес представляют гетероструктуры со слоями гадолиния в контакте с магнитными слоями группы переходных и редкоземельных металлов [3–8].

Помимо этого наночастицы Gd_2O_3 применяются в медицине в нейтрон-захватной терапии, магнитно-резонансной томографии [9, 10] и др. Недавно было показано, что атомы гадолиния, внедренные в наночастицы оксида церия, обладают противовоспалительными свойствами [11].

Таким образом, указанные примеры показывают необходимость количественной характеристики атомов гадолиния в различных гетероструктурах. Благодаря большому сечению реакции ${}^mGd(n, \gamma){}^{m+1}Gd$ для изотопов $m = 155, 157$ нейтронный активационный анализ является широко применяемым методом для исследования гадолиний-содержащих материалов. Для слоистых систем с тонкими Gd-слоями такие эксперименты удобно проводить под скользящими углами падения, в так называемом режиме рефлектометрического эксперимента (рис. 1). Вероятность испускания гамма-кванта в таком эксперименте может быть записана как [12, 14]

$$\tau = c \frac{4}{k_z} \int |\Psi(z)|^2 \rho_{im} dz, \quad (1)$$

где $k_z = 2\pi \sin \vartheta / \lambda$ — компонента переданного импульса нейтрона, нормальная к поверхности образца; ϑ — угол скольжения и λ — длина волны нейтрона; $\Psi(z)$ — волновая функция нейтрона внутри образца; ρ_{im} — мнимая часть плотности длины

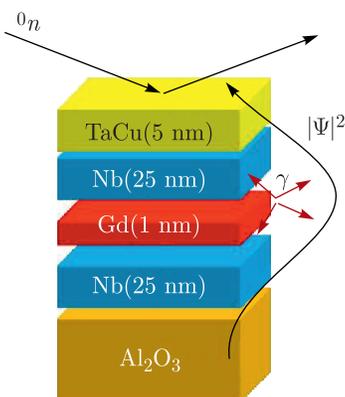


Рис. 1. Зарисовка эксперимента и дизайн структуры TaCu(5 нм)/Nb(25 нм)/Gd(1 нм)/Nb(25 нм)/Al₂O₃

рассеяния (ПДР), связанная с поглощением нейтрона; c — нормировочная константа, учитывающая эффективность гамма-детектора, его телесный угол и т. п. При 100%-й эффективности и телесном угле $4\pi c = 1$. Интегрирование в (1) ведется по положению слоя Gd. При больших величинах k_z вдали от полного внешнего отражения (ПВО) нейтронов ($k_z > k_{\text{crit}}$) плотность нейтронов $|\Psi(z)|^2$ слабо отличается от единицы, так что согласно (1) интенсивность гамма-лучей прямо пропорциональна массе гадолиниевого слоя. Это делает возможным использовать метод гамма-спектроскопии для определения количества гадолия в образце. Вблизи ПВО ($k_z \sim k_{\text{crit}}$) падающая нейтронная волна интерферирует с отраженной, формируя стоячую нейтронную волну. Это ведет к тому, что а) плотность нейтронов возрастает до величины $|\Psi(z)|^2 = 4$ и б) максимум стоячей волны зависит от k_z . Это согласно (1) дает возможность усилить гамма-сигнал и получить селективность сигнала по глубине. Первый эксперимент по использованию режима нейтронных стоячих волн для исследования слоя гадолиний-содержащих наночастиц на границе раздела жидкость/твердое тело был проведен в работе [12].

Помимо режима стоячих волн с $|\Psi(z)|^2 = 4$ существует режим РУСВ, в которых нейтронная плотность может быть усилена на несколько порядков по сравнению с плотностью падающих нейтронов. Для создания усиленных стоячих волн исследуемый слой помещается внутрь структуры, имеющей особый профиль плотности длины рассеяния. Наиболее распространенным является профиль «квантового колодца», в котором слой с низкой ПДР окружен сверху и снизу слоями с более высокой ПДР. В такой системе при определенных k_z ниже ПВО стоячая нейтронная волна резонансно усиливается, что согласно (1) ведет к многократному усилению выхода гамма-частиц. Режим РУСВ для усиления гамма-сигнала был впервые использован в работе [14]. В ней исследуемый слой оксида гадолия номинальной толщиной 5 нм помещался внутрь резонаторной структуры, состоящей из поливинилциклогексановой пленки суммарной толщиной порядка 150 нм. Благодаря наличию большого количества водорода с отрицательной длиной рассеяния нейтронов средняя ПДР данного слоя была близка к нулю. Сверху система накрывалась слоем дейтерированного полистерена. Дейтерий, в отличие от водорода, имеет положительную и сравнительно большую длину рассеяния, так что средняя ПДР верхнего слоя была выше, чем слоя под ним, что вместе с буферным слоем никеля позволило создать резонаторную структуру. В эксперименте использовался монохроматический пучок нейтронов с $\lambda = 4,1 \text{ \AA}$. Для каждого угла скольжения ϑ нейтронного пучка одновременно измерялись интенсивности отраженных нейтронов и гамма-сигнала при помощи гамма-детектора, размещенного над образцом (см. рис. 1). При волновых векторах, соответствующих резонансным модам, наблюдались пики интенсивностей гамма-частиц. При этом интенсивность гамма-лучей в резонансных условиях превышала выход гамма-лучей при $k_z > k_{\text{crit}}$ в 4–8 раз. Можно посчитать, что при площади засветки образца $35 \times 40 \text{ мм}$ и толщине слоя 5 нм в данном эксперименте при помощи усиленных стоячих волн был измерен сигнал всего 50 мкг гадолия.

Целью данной работы является экспериментальное определение предела чувствительности гамма-спектроскопии в режиме РУСВ. Эксперимент был проведен на времяпролетном рефлектометре РЕМУР импульсного реактора ИБР-2. Недавно рефлектометр был модернизирован в части возможности измерения гамма-сигнала одновременно с измерением интенсивности отраженных нейтронов [15]. Для регистрации

гамма-квантов в эксперименте использовался полупроводниковый германиевый детектор, работающий в диапазоне 3 кэВ–10 МэВ. Германиевый кристалл имеет диаметр 61,2 мм и длину 87,3 мм. Для гамма-излучения с энергией 1,33 МэВ эффективность регистрации составляет 45%, а разрешение по энергии 2 кэВ. Гамма-детектор был размещен на расстоянии 3 см от поверхности образца.

Для эксперимента использовалась структура, в которой слой гадолиния толщиной 1 нм был помещен в резонаторную структуру, состоящую из 50 нм ниобия, накрытого сверху TaCu(5 нм) слоем на поверхности (см. рис. 1). Структуры изготовлены методом магнетронного распыления в Институте физики металлов им. М. Н. Михеева УрО РАН и были использованы нами ранее для исследования эффектов близости в сверхпроводяще-ферромагнитных гетероструктурах [1]. Размер подложки, примененной в эксперименте, составлял 20×15 мм, весь образец засвечивался нейтронами. На рис. 2, а приведены интенсивности зеркального нейтронного отражения (черные точки) и характеристического γ -излучения с энергией 182 кэВ (красные точки) как функция k_z . Данная энергия является характеристической при захвате нейтрона изотопом ^{157}Gd с сечением захвата 259 кб. Нейтронная кривая характеризуется ПВО с критическим вектором $k_{\text{crit}} = 0,09 \text{ нм}^{-1}$, осцилляциями Кизиха выше k_{crit} , а также провалом ниже k_{crit} , соответствующим формированию волноводного резонанса при $k_{\text{res}} = 0,078 \text{ нм}^{-1}$. При этом в эксперименте наблюдался пик интенсивности гамма-квантов, амплитуда которого превышала типичную интенсивность гамма-лучей при $k_z > k_{\text{crit}}$ примерно на порядок.

Совместный анализ нейтронных и гамма-данных проводился в программном пакете ESCAPE [16, 17]. Для фитирования нейтронных данных варьировались толщины слоев и их ПДР, а также среднеквадратичные высоты шероховатостей на границах раздела различных слоев. Для полученных данных рассчитывалась волновая функ-

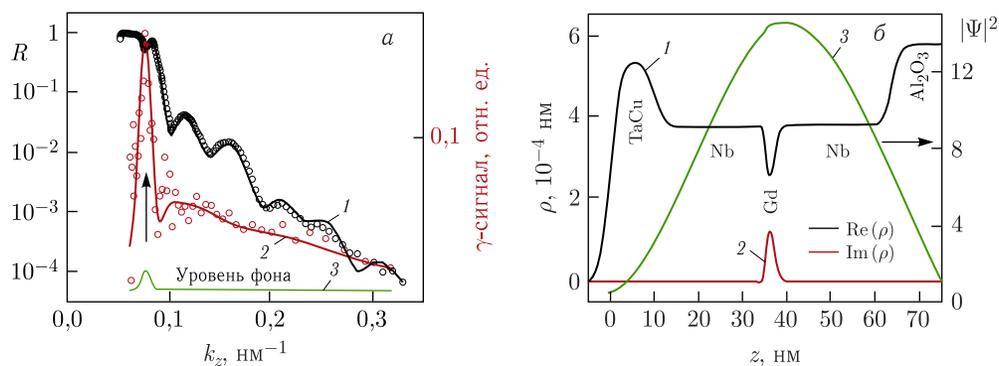


Рис. 2 (цветной в электронной версии). а) Экспериментальные данные (точки) и расчет коэффициента нейтронного отражения (черная линия, 1) и гамма-рассеяния (красная линия, 2) для TaCu(5 нм)/Nb(25 нм)/Gd(1 нм)/Nb(25 нм)/ Al_2O_3 . Положение волноводного резонанса показано вертикальной стрелкой. Зеленой линией (3) показана модельная кривая гамма-выхода для структуры TaCu(5 нм)/Nb(25 нм)/Gd(0,2 нм)/Nb(25 нм)/ Al_2O_3 с ультратонким слоем Gd(0,2 нм). б) Профиль в глубину реальной (черная линия, 1) и мнимой (красная линия, 2) частей ПДР, полученный в результате фита. ПДР для гадолиния рассчитывалась для длины волны $\lambda = 4,1 \text{ \AA}$, соответствующей положению оптического резонанса. Зеленой линией (3) показан профиль плотности нейтронов $|\Psi(z)|^2$ в резонансе

ция нейтронов и с ее помощью — функция выхода гамма-квантов по формуле (1). Дополнительными параметрами при фите гамма-интенсивности были скалирующий параметр c и фоновая интенсивность I_{bg} , которая добавлялась к формуле (1), рассчитывающей гамма-сигнал. Помимо этого нейтронные и рентгеновские кривые были свернуты с функцией разрешения спектрометра, учитывающей расходимость падающего нейтронного пучка и разрешение по длине волны нейтрона. Особенностью обработки данных времяпролетного эксперимента являлся тот факт, что длина рассеяния гадолия зависела от длины нейтронной волны, что было учтено при обработке. Результаты подгонки представлены сплошными линиями на рис. 2, а. Соответствующий профиль ПДР и рассчитанная для него плотность нейтронов в резонансе представлена на рис. 2, б. Как видно из рис. 2, а, модель очень хорошо согласуется с экспериментом.

Таким образом, в настоящей работе экспериментально показана возможность получения гамма-сигнала в режиме РУСВ от пленки гадолия толщиной всего 1 нм. Для площади образца 30 см² масса гадолия составила 2 мкг, что примерно в 25 раз меньше, чем в работе [14]. Кроме того, как видно из рис. 2, а, гамма-сигнал от нанометрового слоя гадолия все еще сильно превышает уровень фона. Используя полученные из фита параметры образца и установки, можно оценить минимальную толщину слоя гадолия, при которой гамма-сигнал будет превышать уровень фона. Зеленой линией (3) на рис. 2, б представлен расчет для гамма-интенсивности от слоя гадолия эффективной толщиной 0,2 Å. Как видно из расчета, интенсивность сигнала в резонансе на 20% превышает уровень фона. Масса гадолия такого слоя составляет 40 нг.

Помимо количественной характеристики ультратонких слоев гадолия данный метод может быть использован при исследовании взаимодействия водорода с нанометровыми слоями методом резонансной нейтронной рефлектометрии [18]. Для таких исследований тонкий слой-метка гадолия помещается посередине исследуемого слоя. Концентрация водорода в исследуемом слое может быть уверенно детектирована по сдвигу резонанса в гамма-канале. Такой метод будет полезен для исследования материалов, обладающих высокой устойчивостью к радиационным и водородным дефектам [19–21].

В настоящей работе экспериментально показана возможность получения гамма-сигнала в режиме усиленных стоячих волн от гетероструктуры с массой гадолия 2 мкг. Видно, что при текущих параметрах количество детектируемого гадолия может быть всего 40 нг. Помимо этого метод будет полезен при исследовании взаимодействия водорода с нанометровыми гетероструктурами.

Ю. Хайдуков и В. Жакетов выражают благодарность Министерству науки и высшего образования РФ за поддержку развития метода нейтронных стоячих волн в рамках гранта № 075-15-2021-1353. В. Жакетов также выражает благодарность РНФ за поддержку исследования в рамках гранта № 22-72-00116.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Khaydukov Yu. N., Vasenko A. S., Kravtsov E. A. et al.* // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. P. 144511.
2. *Khaydukov Yu. N., Kravtsov E. A., Zhaketov V. D. et al.* // Phys. Rev. B. 2019. V. 99. P. 140503(R).

3. *Antropov N. O., Khaydukov Yu. N., Kravtsov E. A. et al.* // JETP Lett. 2019. V. 109. P. 406–409.
4. *Antropov N. O., Kravtsov E. A., Makarova M. V. et al.* // Phys. Rev. B. 2021. V. 104, No. 5. P. 054414.
5. *Drovosekov A. B., Ryabukhina M. V., Kholin D. I. et al.* // JETP. 2018. V. 127. P. 742–752.
6. *Antropov N. O., Kravtsov E. A., Khaidukov Yu. N. et al.* // JETP Lett. 2018. V. 108. P. 341–345.
7. *Ryabukhina M. V., Kravtsov E. A., Naumova L. I. et al.* // Phys. Metals Metallogr. 2017. V. 118. P. 143–149.
8. *Ryabukhina M. V., Kravtsov E. A., Blagodatkov D. V. et al.* // J. Surf. Invest. 2014. V. 8, No. 5. P. 983.
9. *Ahrén M., Selegaård L., Klasson A. et al.* // Langmuir. 2010. V. 26, No. 8. P. 5753–5762.
10. *Abrikossova N., Skoglund C., Ahrén M. et al.* // Nanotech. 2012. V. 23. P. 275101.
11. *Eriksson P., Tal A. A., Skallberg A. et al.* // Sci. Rep. 2018. V. 8. P. 6999.
12. *Schiff L. I.* Quantum Mechanics. 3rd ed. Tokyo, Japan, 1968.
13. *Schneck E., Jentschel M., Gege C. et al.* // Langmuir. 2013. V. 29. P. 4084.
14. *Zhang H., Gallagher P. D., Satija S. K. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. P. 3044.
15. *Zhaketov V. D., Hramco K., Petrenko A. V. et al.* // J. Surf. Invest. 2021. V. 15. P. 549.
16. *Korolkov D., Rakhimov S.* arXiv:2011.01340.
17. <https://escape-app.net/>
18. *Guasco L., Khaydukov Yu. N., Pütter S. et al.* // Nat. Commun. 2022. V. 13. P. 1486.
19. *Laptev R. S., Stepanova E. N., Lomygin A. D. et al.* // Metals. 2024. V. 14. P. 452.
20. *Laptev R. S., Stepanova E. N., Pushilina N. S. et al.* // Coatings. 2023. V. 13. P. 193.
21. *Laptev R. S., Krotkevich D. G., Lomygin A. D. et al.* // Metals. 2023. V. 13. P. 903.

Получено 2 мая 2023 г.