

МОДЕРНИЗИРОВАННЫЙ БЕЗЖИДКОСТНЫЙ ГЕЛИЕВЫЙ КРИОСТАТ ЗАМКНУТОГО ЦИКЛА ДЛЯ МЕССБАУЭРОВСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

© 2023 г. С. С. Старчиков^а, К. О. Фунтов^а, В. А. Заяханов^{а,*}, К. В. Фролов^а,
М. Г. Клёнов^б, И. Ю. Бондаренко^б, И. С. Любутин^а

^аИнститут кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН
Россия, 119333, Москва, Ленинский просп., 59

^бООО “Криогенные приборы”
Россия, 123060, Москва, ул. Расплетина, 11, к. 2

*e-mail: zayakhanov.vladimir@gmail.com

Поступила в редакцию 12.10.2022 г.

После доработки 18.10.2022 г.

Принята к публикации 26.11.2022 г.

Одной из проблем при использовании криостатов замкнутого цикла для прикладных и фундаментальных научных исследований остается передача механических вибраций на исследуемый образец. Особенно это актуально для мессбауэровской спектроскопии и оптических методов исследований, так как в таком случае это приводит к уширению спектральных линий. В данной работе представлены различные инженерные подходы для снижения механических вибраций, передаваемых на образец, в криостатах замкнутого цикла, в частности, при проведении мессбауэровской спектроскопии. Проведен анализ уширения спектральных линий эталонного поглотителя – фольги α -Fe, а также выполнено сравнение спектров высококачественного монокристалла FeVO_3 до и после модернизации криостата. Полученные результаты могут быть использованы при разработке новых или усовершенствовании существующих криостатов.

DOI: 10.31857/S003281622302026X, EDN: GTURMM

ВВЕДЕНИЕ

Мессбауэровская (ядерная γ -резонансная) спектроскопия является уникальным методом исследования твердых тел, позволяющим проводить изучение фазового состава, магнитных и электронных сверхтонких взаимодействий, волн спиновой и зарядовой плотности, фазовых переходов в условиях криогенных температур и при высоких давлениях в камерах с алмазными наковальнями [1–9]. Очень часто исследуемые эффекты проявляются при температурах существенно ниже комнатной, что требует наличия криостатов и хладагентов, таких как жидкий азот и гелий.

Можно выделить два основных типа коммерческих исследовательских криостатов: 1) криостаты, в которых для получения температур ниже 77 К необходимо обеспечить подвод (подачу) жидкого гелия, и 2) криостаты замкнутого цикла (безжидкостные) на основе криокулеров, в которых используется только газообразный гелий. К первому типу относятся заливные и проточные криостаты. Пример мессбауэровского криостата первого типа представлен в работе [10]. В настоящее время научные группы стремятся использо-

вать криостаты второго типа – безжидкостные криостаты, которые не требуют такого дорогого и невосполнимого ресурса, как жидкий гелий [11, 12]. Это экономическое преимущество безжидкостных криостатов становится ключевым при длительных измерениях (дни, недели, месяцы), что особенно актуально при мессбауэровских исследованиях. В таких криостатах обычно используются одноступенчатые и двухступенчатые криокулеры на основе цикла Гиффорда–МакМагона и на основе цикла пульсационной трубы. Недостатком криокулеров на основе замкнутого цикла Гиффорда–МакМагона [13] являются механические вибрации, вызванные циклическим возвратно-поступательным движением вытеснителя, имеющего значительную массу. В криокулерах на основе пульсационной трубы вибрации возникают из-за периодической прокачки охлаждающего газа при высоком давлении. Даже небольшие вибрации (на уровне единиц микрометров) вызывают заметное уширение экспериментальных мессбауэровских спектров и могут приводить к серьезным ошибкам при их анализе и интерпретации.

Для борьбы с вибрациями обычно применяют несколько стандартных решений, суть которых

состоит в минимизации или полном исключении механического контакта между головкой криокулера (далее — криоголовка), которая является основным источником вибраций, и исследуемым образцом при одновременном обеспечении максимальной теплопередачи от образца к криоголовке [11, 12, 14, 15]. Для этого используют: 1) гибкие металлические соединители, обеспечивающие одновременно хороший тепловой контакт и минимальную передачу вибраций, или 2) газообразный гелий в качестве теплообменного газа [16–18]. Во втором случае необходимо следить за температурой и давлением газа, так как конденсированные капли гелия могут приводить к механическому контакту вибрирующих частей криоголовки и держателя образца. Также для борьбы с вибрациями целесообразно утяжелять или жестко фиксировать отдельные узлы установки, использовать активные или пассивные вибродемпфирующие опоры (основания), а для механического разделения блока криоголовки и узла крепления образца применять металлические или резиновые сильфоны [11]. Контроль и визуализацию вибраций можно осуществлять с помощью систем на основе интерферометров и акселерометров [11, 17] или непосредственно по уширению линий в мессбауэровском спектре эталонного поглотителя [16, 18].

В работе [16] предложена оригинальная конструкция криостата, в которой вибрирующий блок криокулера жестко крепится на специальной башне к потолку помещения. Проведенный во всем диапазоне рабочих температур анализ ширины линий мессбауэровского спектра показал, что такая конструкция позволяет полностью избавиться от уширений. Однако большим недостатком такой конструкции является ее громоздкость, сложность сборки и юстировки.

Большинство производителей мессбауэровских и оптических криостатов замкнутого цикла, таких как LakeShore (Janis), США, CryoIndustries of America Inc., США, ICEoxford, Великобритания, Advanced Research Systems Inc., США, Montana Instruments, США, Attocube systems AG, Германия, ООО “Криогенные приборы”, Россия, использует стандартные решения по минимизации вибраций.

В одной из распространенных конструкций мессбауэровских криостатов, которую используют, например, LakeShore (Janis), CryoIndustries of America Inc, а также авторы работы [18], криостат конструктивно разделен на две основные части, одна из которых изолирована от вибраций, присутствующих в другой части. Одна из частей — это непосредственно криоголовка, совмещенная с криостатом и являющаяся источником вибраций, а вторая — стол, на котором установлен спектрометр и к которому крепится подвес с об-

разцом, опускаемый в шахту криостата (см., например, рис. 1). При этом стол не касается криостата и вибраций не создает. Для минимизации вибраций, передаваемых по полу, используются пневмоопоры и/или вибродемпфирующие основания. Верхняя часть крепления подвеса с держателем образца (шток) отделяется от криоголовки мягкой эластичной виброизолирующей манжетой из гофрированной резины. Этот узел является ключевым при передаче вибраций, и от его виброизоляционных свойств в первую очередь зависит уровень вибраций на подвешенном образце. Используемые в работе [18] методы борьбы с вибрациями недостаточны, так как при температуре $T = 5$ К уширение линий составляет 10–15% по сравнению со спектром, полученным при выключенном криокулере. Отметим, что производители (LakeShore (Janis), CryoIndustries of America Inc., ICEoxford, Advanced Research Systems Inc.) не всегда сообщают об уровне уширения линий в спектре при наиболее низких рабочих температурах, а вопрос влияния износа криоголовки на уширение спектральных линий практически не исследован.

Данная работа посвящена модернизации конструкции безжидкостного гелиевого криостата замкнутого цикла, ранее описанного в работе [18]. В статье описаны изменения, внесенные в исходную конструкцию криостата, а также приведены данные о влиянии износа криоголовки на уширение линий. Для оценки уширения линий проведены мессбауэровские измерения на стандартном поглотителе — фольге α -Fe — и на высококачественных монокристаллах FeBO_3 до и после модернизации криостата.

ИСХОДНАЯ КОНСТРУКЦИЯ КРИОСТАТА

Устройство криостата, разработанного в работе [18], показано на рис. 1а. Криоголовка 1, модель SHI RDK-408D2, работающая на цикле Гиффорда–МакМагона, имеет две ступени охлаждения: холодопроизводительность первой ступени 40 Вт при температуре 43 К, второй ступени — 1 Вт при 4.2 К. В качестве рабочего тела используется газообразный ^4He высокой чистоты (99.99999%). Время захолаживания до 4.2 К на второй ступени криоголовки составляет 1 ч 10 мин. В ходе тестовых экспериментов [18] удавалось получить температуру 2.7 К на второй ступени криоголовки. Производитель криокулера (фирма SHI) рекомендует проводить обслуживание (замену подвижных частей криоголовки) каждые 10000 ч работы и заменять адсорбер в отдельно стоящем компрессоре каждые 20000 ч.

Криоголовка 1 захолаживает экран 2 и внутреннюю изотермическую шахту 3. В шахте располагается шток 4, выполненный в виде трубки из

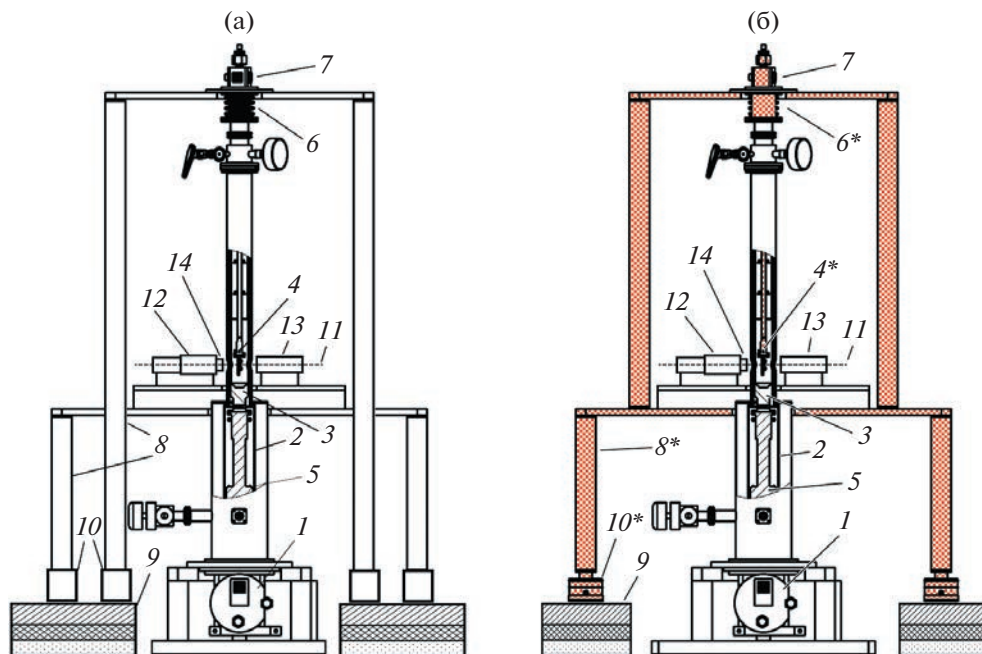


Рис. 1. Схемы исходного (а) и модернизированного (б) криостатов. Основные элементы исходного криостата: 1 – криоголовка; 2 – экран; 3 – шахта; 4 – шток с держателем образца; 5 – холодная ловушка; 6 – гофрированная резиновая манжета; 7 – разъем подключения датчика температур и нагревателя; 8 – два стола (на одном расположен мессбауэровский спектрометр, на втором закреплен шток); 9 – вибродемпфирующие основания, состоящие из слоя песка, слоя эластомерной резины и металлической плиты; 10 – металлические опоры; 11 – оптическая ось криостата и мессбауэровского спектрометра; 12 – модулятор; 13 – детектор; 14 – источник γ -квантов. На рисунке (б) красной штриховкой отмечены измененные узлы в модернизированном криостате: 4* – шток с шарнирным подвесом; 6* – гофрированная резиновая манжета с проставочными кольцами; 8* – измененный стол; 10* – пневмоопоры.

нержавеющей стали $\varnothing 10$ мм, на нижнем конце которой смонтирован медный держатель образца. Шток оснащен латунными тепловыми экранами, установленными вдоль его длины через каждые 7 см. В верхней части шток закреплен на отдельно стоящем столе 8, не касающемся криоголовки и криостата (см. рис. 1а).

На держателе образца расположены измеряющий спай термопары Cu/CuFe и резистивный нагреватель (сопротивлением $R = 10$ Ом). Выводы контактных проводов термопары и нагревателя размещены вверху штока в коммутационном разъеме 7. Соединение шахты и штока осуществляется с помощью виброизолирующей манжеты из гофрированной резины 6.

Процесс охлаждения образца состоит в следующем. Шток 4 с держателем исследуемого образца помещается в изотермическую камеру шахты 3. Перед включением криокулера осуществляется откачка шахты до 10^{-5} атм и вакуумного кожуха второй ступени криостата до 10^{-8} атм. Остаточный газ в вакуумном кожухе криостата вокруг второй ступени криоголовки адсорбируется холодной ловушкой 5 с активированным углем (см. рис. 1а). После охлаждения второй ступени криоголовки примерно до 3 К (а образца на штоке до 140 К) в шахту добавляется теплообменный газ –

гелий технической чистоты (99.8%). Это позволяет охладить образец до 4–5 К без прямого механического контакта с криоголовкой. Контроль и удержание температуры осуществлялись с помощью терморегулятора tSTAT 310x (RTI Cryo systems) [19].

В работе использовался стандартный мессбауэровский спектрометр MS-1104Em. В состав спектрометра входит источник γ -квантов 14, закрепленный на модуляторе 12, и детектор 13. Источник γ -излучения $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ располагался вне криостата и находился при комнатной температуре. В качестве стандартного поглотителя применялась фольга α -Fe толщиной 25 мкм, отожженная в водороде. Спектрометр размещен на спектрометрическом столе 8. В этом случае мессбауэровский спектрометр и шток 4 с образцом механически “развязаны” от вибрирующей криоголовки 1. Окна криостата, через которые проходит γ -излучение, выполнены из майлара толщиной 100 мкм.

В нашей лаборатории время наработки криокулера составило около 40 000 ч за 12 лет эксплуатации. После 25 000 ч работы заменялся адсорбер в компрессоре, но не проводилась замена или обслуживание движущихся частей криоголовки. Перед модернизацией криостата контрольные измерения ширины линий мессбауэровского

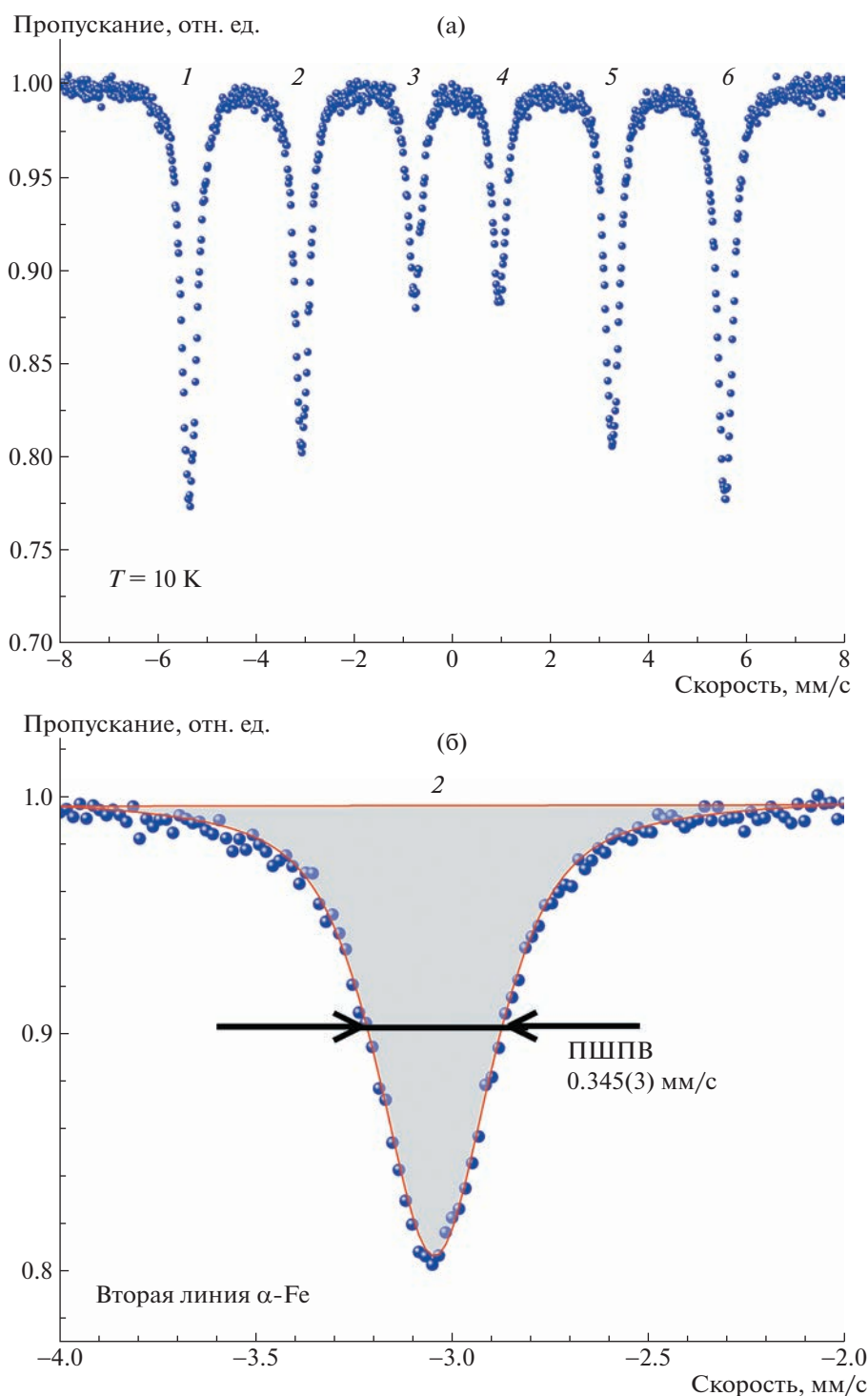


Рис. 2. **а** – мессбауэровский спектр α -Fe при $T = 10$ К, измеренный перед модернизацией криостата; **б** – ширина 2-й резонансной линии в спектре. Цифры соответствуют номерам спектральных линий.

спектра выполнены на стандартном поглотителе α -Fe.

Получены следующие результаты. С выключенным криокулером при комнатной температуре ширины второй и пятой линий мессбауэров-

ского секстета составили 0.267(1) мм/с. При работающем криокулере и минимальном давлении обменного газа (не более 10^{-2} атм) удавалось получить на образце температуру $T = 10$ К. При этом ширины второй и пятой спектральных ли-

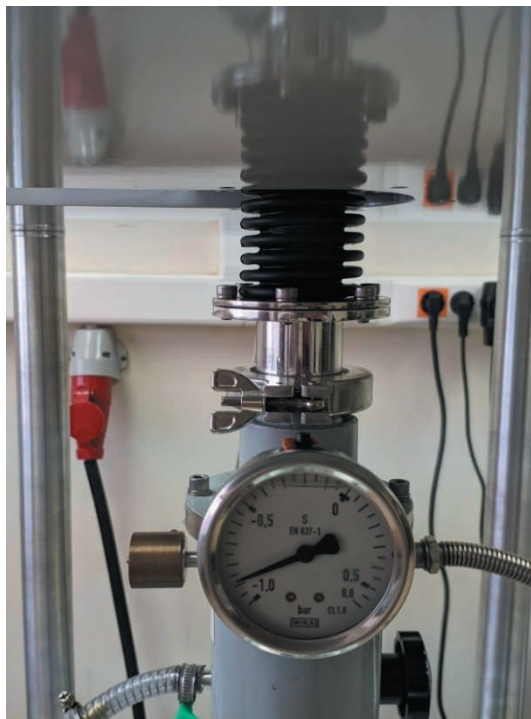


Рис. 3. Внешний вид гофрированной резиновой манжеты (позиция *б* на рис. 1), обеспечивающая вакуумное соединение криостата и верхней части штока. Давление гелия в шахте криостата 0.1 атм. Манжета не прижимается к внутренней вставке и не передает вибрации на шток с образцом благодаря установленным металлическим кольцам внутри.

ний составили 0.345(3) мм/с (рис. 2). Это значение соответствует уширению 30% по сравнению со спектром, полученным при выключенном криокулере (при $T = 295$ К), что в два раза выше уширения, полученного в работе [18] при $T = 4.2$ К на начальном этапе эксплуатации криоголовки.

Для получения температур ниже 10 К требовалось увеличить количество обменного газа, напускаемого в шахту, что увеличивало ширину спектральных линий вплоть до 0.40 мм/с при 7 К (уширение 48%).

Таким образом, после 40000 ч эксплуатации криоголовка позволяла получать температуры ниже 5 К только при существенном уширении линий. Мы считаем, что увеличение уширения линий мессбауэровского спектра вызвано повышенным износом подвижных частей криоголовки и связано с изменением интенсивности и характера вибрации.

Учитывая наш опыт эксплуатации криостата и результаты других научных групп по криосистемам замкнутого цикла в целом, мы предложили усовершенствовать конструкцию криостата, чтобы понизить аппаратные уширения до минимума.

МОДЕРНИЗИРОВАННАЯ КОНСТРУКЦИЯ КРИОСТАТА

В рамках модернизации существенно переработана конструкция штока, столов для размещения спектрометра и крепления штока, установлены окна криостата из майлара с напылением алюминия для минимизации теплового излучения, заменен ряд узлов криостата (в частности, криоголовка).

Для снижения вклада собственных колебаний спектрометрический стол и стол с креплением штока были объединены в единую конструкцию (рис. 16). Металлические опоры 10 (см. рис. 1а) были заменены на пневмоопоры 10* (см. рис. 16). Давление во всех четырех пневмоопорах регулируется и поддерживается постоянным (3 атм) с помощью компрессора Jas 1203. Наши испытания показали, что давление в пневмоопорах стабильно в течение трех месяцев. Для улучшения виброизолирующих свойств новой конструкции стола использовались дополнительные утяжелители (свинцовые блоки), при помощи которых спектр собственных частот стола смещался из зоны спектра частот вибрации криоголовки. Помимо этого, применение дополнительных утяжелителей позволило сместить работу пневматических виброопор в зону частот, где их изолирующие свойства максимальны. Оценка изолирующих свойств пневмоопор проводилась в управляющей программе мессбауэровского спектрометра, ко-



Рис. 4. Фотография нового штока (а) и увеличенное изображение держателя образца (б).

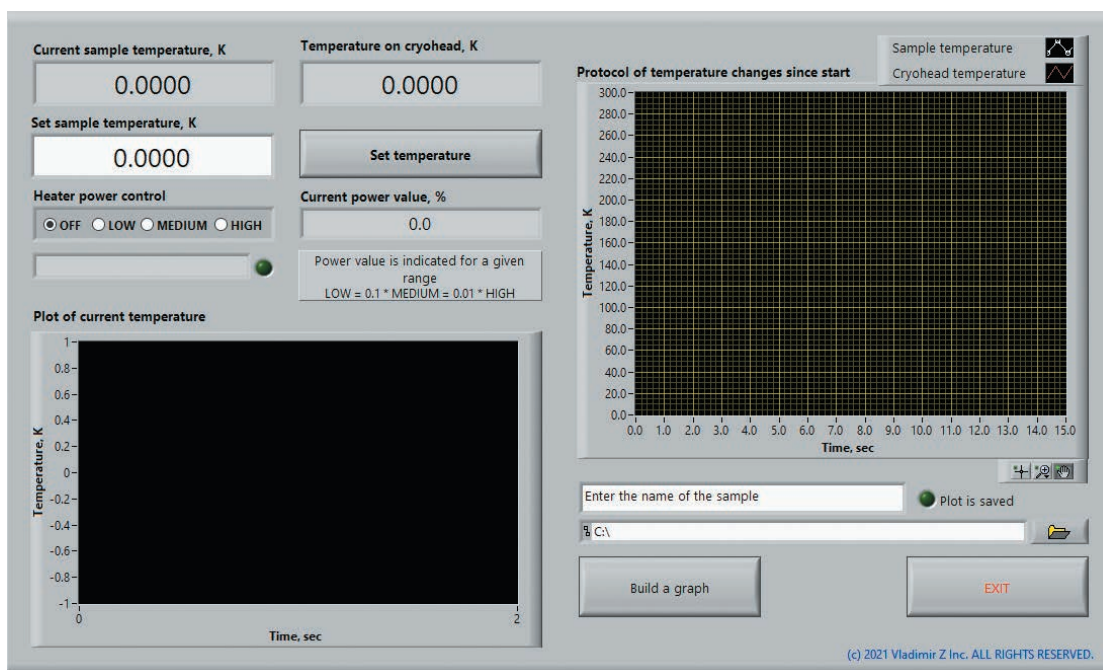


Рис. 5. Окно программы, управляющей терморегулятором.

торая позволяет отслеживать отклонения от заданного закона движения источника излучения. В модернизированной конструкции криостата удалось добиться отсутствия периодических отклонений, связанных с циклическим движением массивного вытеснителя, т.е. связанных с работой криоголовки.

При откачке газа из камеры криостата в старой конструкции [18] манжета б (см. рис. 1а) деформировалась и прижималась к внутренней вставке, тем самым она теряла часть своих виброизоляционных свойств. Для предотвращения этого эффекта в каждый виток манжеты были установлены проставочные металлические кольца диаметром 60 мм, что позволило исключить прижим манжеты к внутренней вставке и, следовательно, передачу вибрации на шток с образцом (рис. 3). При этом виброизолирующие свойства манжеты в осевом направлении остались практически такими же. Устранение деформирования манжеты оказалось очень актуальным, так как при работе практически во всем диапазоне температур давление в шахте ниже атмосферного (вакуум или разреженный гелий).

Конструкция штока в криостате была полностью изменена. Фотография нового штока представлена на рис. 4. Основным отличием от старой конструкции является применение шарнирного подвеса в верхней части штока.

Шарнирный подвес ослабляет механическое взаимодействие между подвешенным образцом и верхней частью штока, а именно позволяет штоку

занимать строго вертикальное положение в шахте криостата и снижает связь между жесткой, зажатой в узле крепления на столе верхней частью штока и его нижней частью с держателем образца. Это устраняет возможность отклонения от вертикали основной части штока, что в противном случае привело бы к значительным его колебаниям в зоне образца. Таким образом снижена чувствительность системы к неидеальной установке стола относительно вертикали и горизонтали, а также относительно криостата, кроме того, уменьшены вибрации на образце, особенно по осям X и Y .

На рис. 4 показаны утяжелители из нержавеющей стали, установленные в нижней части штока. Для получения температур ниже 5 К необходимо добавление обменного газа в шахту до давлений выше 0.1 атм. При таком давлении обменный газ может раскачивать шток с шарнирным подвесом, поэтому предполагается, что установка утяжелителей для увеличения массы штока может минимизировать колебания.

Общая масса трех утяжелителей составила 117 г. Однако эксперименты показали, что наличие грузов на штоке в разных позициях не дало положительного эффекта уменьшения уширения резонансных линий, но при этом негативно сказалось на скорости захолаживания. Поэтому было решено отказаться от установки грузов на штоке.

В новой модели штока медный держатель образца дополнительно покрывался золотом для защиты от воздействия окружающей среды и улучшения теплового контакта. В держателе образца

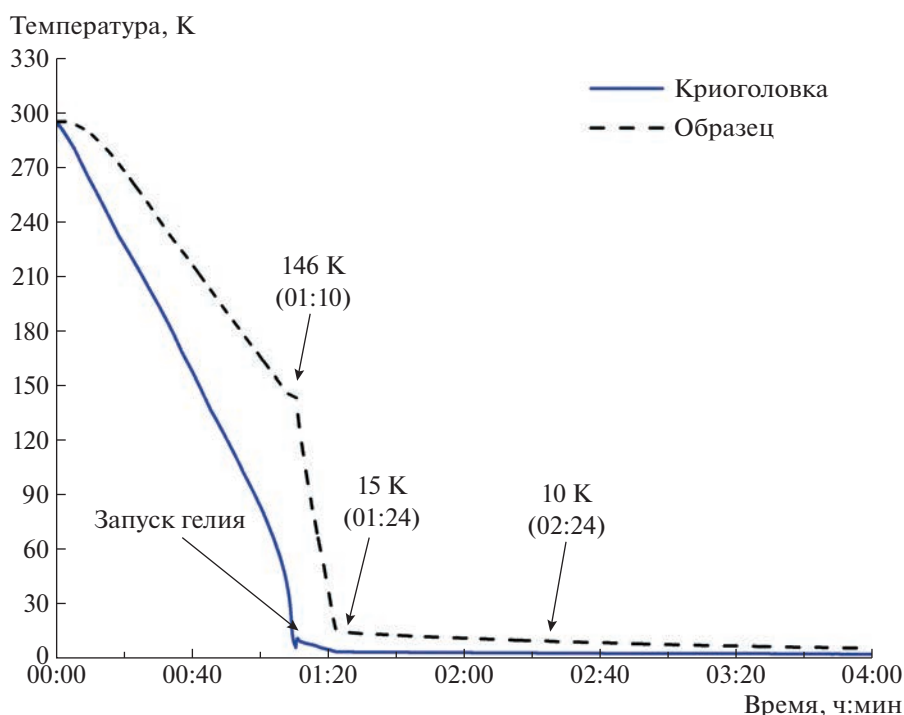


Рис. 6. Кривые захлаживания криостата на второй ступени криоголовки (сплошная линия) и образца (штриховая линия).

(см. рис. 4б) выполнено цилиндрическое углубление — посадочное гнездо Ø14 мм и глубиной 2 мм — для размещения свинцовых коллиматоров и мессбауэровского поглотителя. На втулке держателя образца смонтированы нагреватель (нихромовая проволока, 10 Ом) и датчик температуры, которые используются для регулирования и измерения температуры образца. В конструкции [18] в качестве датчика температуры использовалась термопара Cu/CuFe, которая в новой конструкции штока была заменена на датчик температуры Cernox CX-1050-CU-HT-1.4L (рекомендованный к использованию в условиях радиоактивного излучения для измерений в широком диапазоне рабочих температур, 0.1–420 K, с высокой точностью — до 5 мK при 4.2 K) [20]. Использование этого датчика позволяет повысить точность удержания температуры исследуемого образца от 0.1 K (Cu/CuFe) до 0.003 K (Cernox) при температуре 5 K, а также проводить мессбауэровские измерения в диапазоне температур до 420 K. Дополнительно в основании шахты размещены угольный датчик температуры (ТВО) и нагреватель (50 Ом), позволяющий греть непосредственно шахту. Датчик температуры и нагреватель (проволока из нихрома) установлены на 2-й ступени криоголовки.

Управление температурой осуществляется с помощью двухканального терморегулятора Lakeshore 335, к которому подключены датчики температуры и нагреватели на штоке и на второй ступени криоголовки.

ПРОГРАММА АВТОМАТИЗАЦИИ ПОДДЕРЖАНИЯ И КОНТРОЛЯ ТЕМПЕРАТУРЫ

Разработана программа автоматизации поддержания и контроля температуры исследуемого образца в среде LabVIEW от National Instruments. Чтобы установить эту программу, пользователь должен скопировать проект, размещенный по адресу https://github.com/LabviewFSRC/Labview/blob/main/tStat2021_eng.vi

Для запуска программы на компьютере должны быть установлены среда разработки Labview 2016 и ОС Windows 10. Программа позволяет дистанционно контролировать требуемую температуру образца, мощность и режимы работы нагревателя, отображать на экране монитора текущие температуры на образце и на второй ступени криоголовки. Все изменения температуры отображаются на графике, который автоматически сохраняется в файл. В программе также реализована возможность автоматического отключения нагревателя в случае повышенных температур, когда появляется угроза повреждения оптических окон криостата.

Интерфейс программы интуитивно понятен и представлен на рис. 5. В поле “Set sample temperature” вводится требуемая температура и подтверждается нажатием кнопки “Set temperature”. Далее необходимо активировать нагреватель, выбрав режим мощности “Low”, “Medium” или

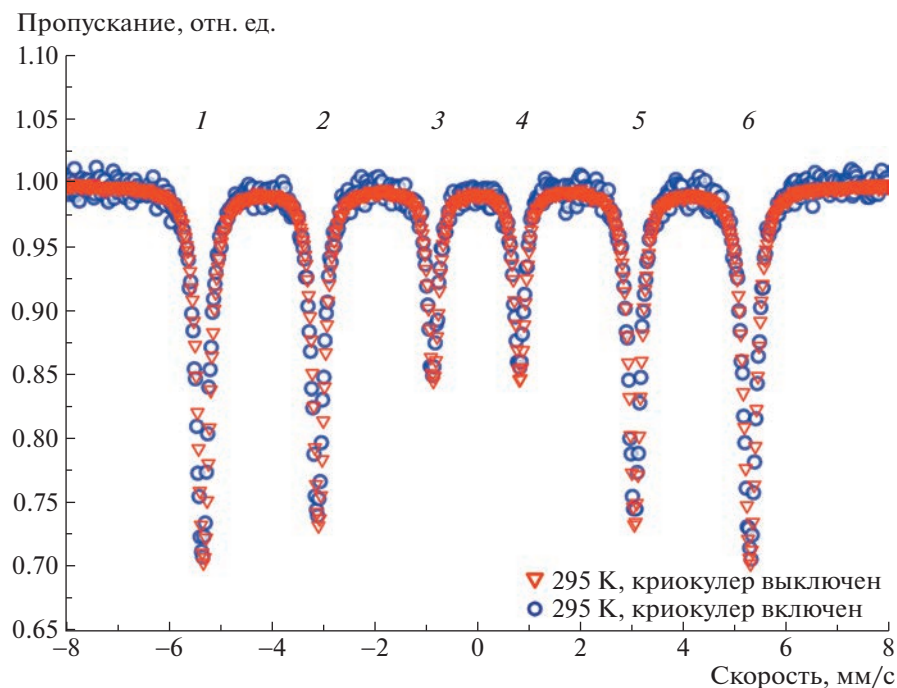


Рис. 7. Мессбауэровские спектры α -Fe при $T = 295$ К при включенном (кружки) и выключенном (треугольники) криокулере. Цифры соответствуют номерам спектральных линий.

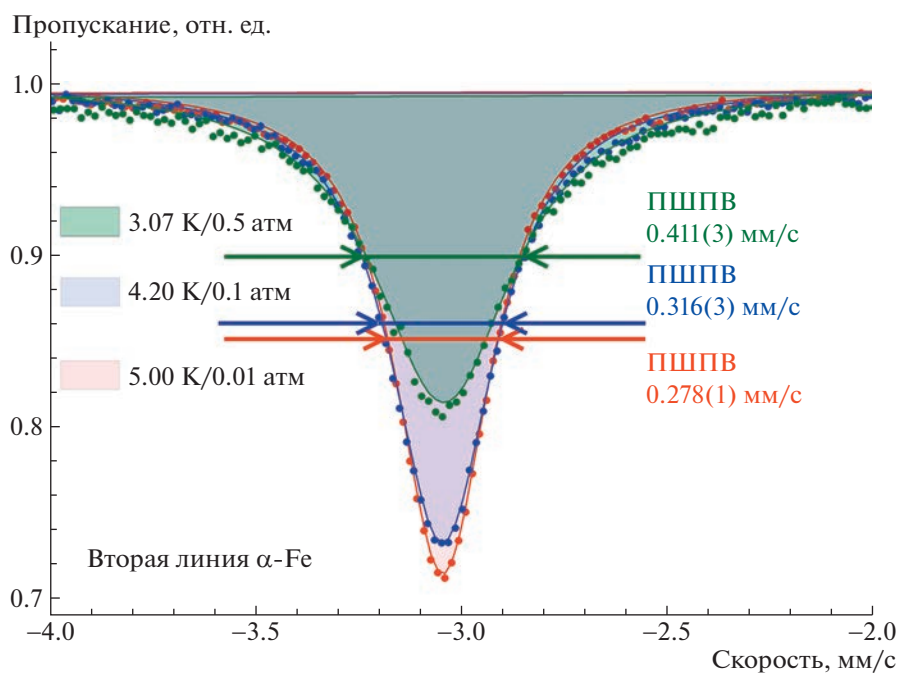


Рис. 8. Ширина 2-й резонансной линии в шестилинейном мессбауэровском спектре α -Fe при различных температурах и давлениях теплообменного газа.

Таблица 1. Ширина 2-й резонансной линии в шестилинейном мессбауэровском спектре α -Fe при различных температурах и разном давлении теплообменного газа. Уширения линий указаны относительно спектра при 295 К с выключенным криокулером

Температура/давление	Модернизированный криостат		Исходный криостат [18]	
	Ширина линий, мм/с	Уширение линий, %	Ширина линий, мм/с	Уширение линий, %
295 К с выкл. кулером / 1 атм	0.267 ± 0.001	—	0.2474	—
295 К с вкл. кулером / 10^{-5} атм	0.276 ± 0.005	4	—	—
5.00 К/ 10^{-2} атм	0.278 ± 0.001	4	0.3226	15.1
4.20 К/ 10^{-1} атм	0.316 ± 0.003	14	0.3913	39.6
3.07 К/0.5 атм	0.411 ± 0.003	53	—	—

“High” в зависимости от величины заданной температуры. При этом загорится зеленый указатель, соответствующий работающему нагревателю. В окне программы отображаются два графика изменения температуры со временем: на левом графике — за последние 15 мин, а на правом — за все время с момента запуска программы.

РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕСТИРОВАНИЯ КРИОСТАТА ПОСЛЕ МОДЕРНИЗАЦИИ

Температурные характеристики

Графики изменения температуры от времени на второй ступени криоголовки и на образце при захлаживании криостата показаны на рис. 6. Тестовые эксперименты показали, что необходимое время для достижения температуры 4.2 К на второй ступени криоголовки составляет 1 ч 10 мин (сплошная линия на рис. 6). Захлаживание образца (штриховая линия на рис. 6) осуществляется поэтапно. На первом этапе образец охлаждается до $T \approx 140$ – 150 К в предварительно откачанной до давления $P \approx 10^{-5}$ атм шахте без добавления теплообменного газа за время около 70–80 мин со скоростью 2.5 К/мин. Если нет необходимости получения более низких температур образца, то уже на этом этапе можно в диапазоне 146–420 К стабилизировать температуру и приступать к измерениям.

Если необходимы измерения при более низких температурах, то в шахту подается теплообменный газ (гелий) до давления $P \approx 10^{-2}$ атм. На рис. 6 (в скобках) приведено время подачи газа 1 ч 10 мин. Дальнейшее снижение температуры образца до 10 К происходит в течение примерно 1 ч 14 мин. Таким образом, весь цикл охлаждения образца до 10 К занимает около 2 ч 24 мин.

Проверка уширения линий в мессбауэровских спектрах

Отметим, что толщина поглотителя влияет на наблюдаемую ширину Γ резонансных линий в мессбауэровском спектре [16]. Для “тонкого” поглотителя ширина линий должна быть близка к $2\Gamma_0$, где Γ_0 — естественная ширина линии, определяемая по времени жизни возбужденного состояния ядра (для ^{57}Fe она составляет 0.097 мм/с). Однако мессбауэровские измерения на таком “тонком” поглотителе могут занимать длительное время, что неэффективно. Поэтому мы использовали “толстый” поглотитель α -Fe с толщиной, близкой к оптимальной, чтобы минимизировать время накопления спектра и при этом добиться хорошего качества спектра. Далее по тексту приведены спектры одного и того же поглотителя α -Fe без корректировки на толщину поглотителя и нерезонансный фон.

На рис. 7 приведены мессбауэровские спектры стандартного поглотителя фольги α -Fe (толщиной 25 мкм) внутри криостата, полученные при включенном и выключенном криокулере при $T = 295$ К. Спектры были аппроксимированы псевдо-Войт-синглетными линиями с помощью программы SpectrRelax [21]. Установлено, что при включенном и выключенном состояниях криокулера ширины линий на полувысоте (ПШПВ) и интенсивности резонансных линий спектра совпадают (см. рис. 7). Это указывает на хорошую виброизоляцию мессбауэровского спектрометра и исследуемого образца от криокулера.

Далее, при включенном криокулере были проведены низкотемпературные тестовые мессбауэровские измерения для того же калибровочного образца α -Fe при температурах 3.07, 4.20, 5.00, 295.00 К. Полученные ширины линий на полувысоте при низких температурах сравнивались с таковыми при 295.00 К при выключенном криокулере.

На рис. 8 показана 2-я резонансная линия в шестилинейном мессбауэровском спектре при

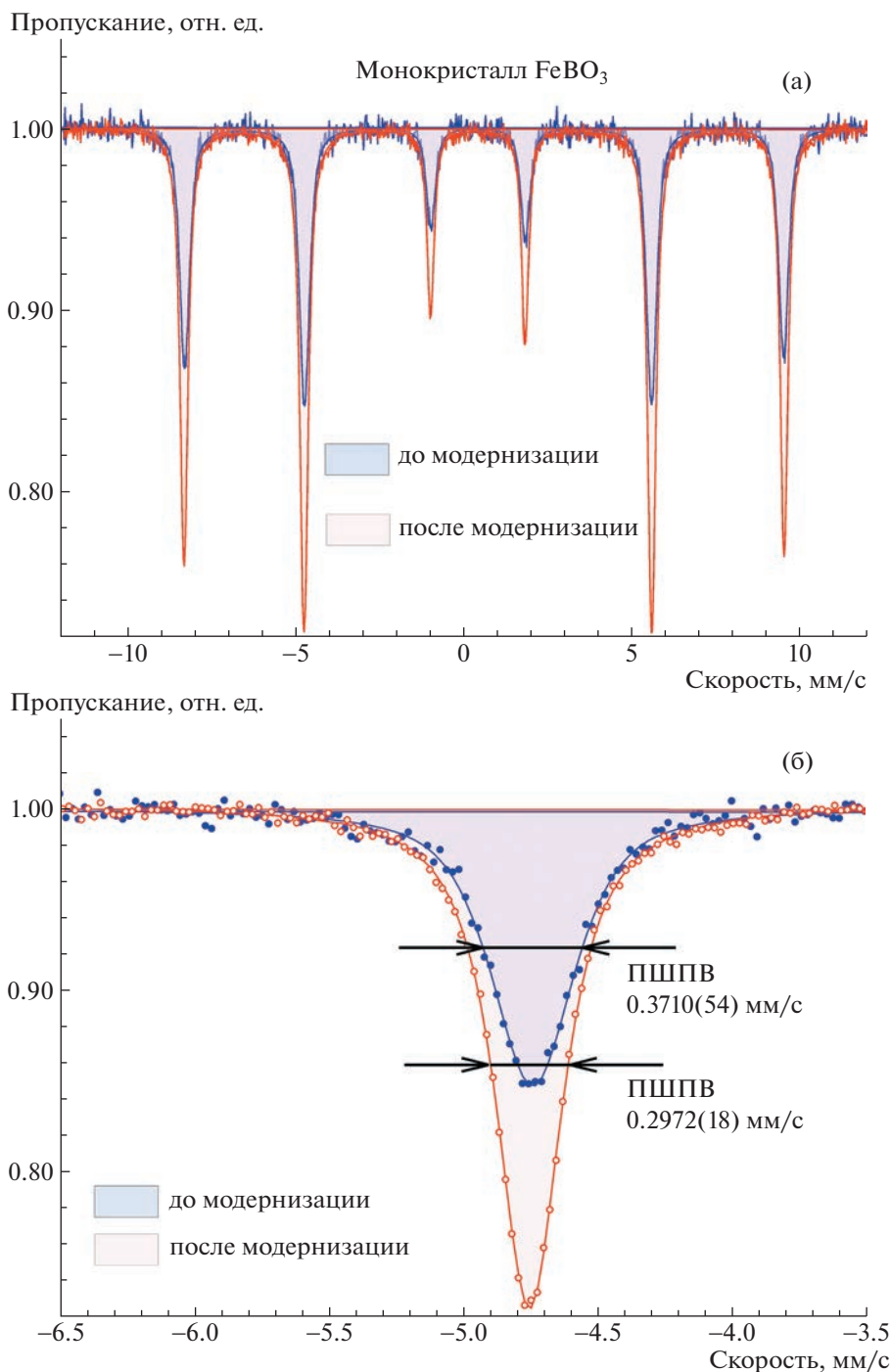


Рис. 9. а — мессбауэровские спектры монокристалла FeBO_3 при $T = 295 \text{ K}$, измеренные до и после модернизации криостата; б — ширина 2-й резонансной линии в спектре.

различных температурах. В этом эксперименте при минимальном давлении теплообменного газа образец охлаждался до 5.00 K . Уширение линии при этом осталось таким же, как и при 295.00 K (в пределах 4%), и сравнимо со статистической погрешностью измерений. Для получения более низких температур необходимо добавить тепло-

обменный газ в шахту с образцом. На величину уширения линий существенное влияние оказывает давление теплообменного газа (табл. 1). Сравнивая величину уширения в модернизированной и исходной конструкциях стола и штока (см. табл. 1), мы видим, что в новой конструкции удалось получить более низкие уширения линий,

чем в исходной. Так, при 4.20 К и давлении газа $P = 0.1$ атм уширения линий составили 14% вместо 40%.

Таким образом, в результате модернизации мессбауэровского криостата удалось существенно снизить уровень вибраций образца и уменьшить величину уширения линий в спектре в 3 раза. Также установлено, что длительные мессбауэровские измерения (более месяца) не повлияли на уширение линий во всем диапазоне температур.

В качестве примера использования возможностей криостата на рис. 9 приведены экспериментальные спектры монокристалла FeVO_3 толщиной около 120 мкм. Исследуемые нами кристаллы были выращены по технологии раствор–расплав [22]. Кристаллы FeVO_3 являются уникальными монокристаллами рентгеновского излучения для получения одиночной резонансной линии мессбауэровского излучения на синхротронных установках, и поэтому к их структурному качеству и совершенству предъявляются очень высокие требования. Полученные из мессбауэровских спектров значения параметров сверхтонкого взаимодействия ядер ^{57}Fe в кристаллах FeVO_3 имеют важное значение для прикладных синхротронных применений этих кристаллов. Поэтому аппаратные уширения линий должны быть сведены к минимальным. С помощью модернизированного криостата проведены мессбауэровские измерения монокристалла FeVO_3 при температурах от 5.30 до 350.00 К с высокой точностью поддержания температуры [23].

Анализ спектров до и после модернизации показал существенное улучшение параметра ширины линии на полувысоте и интенсивности. Это заметно упрощает анализ мессбауэровских спектров, улучшает разрешение линий в спектре (что особенно важно при температурах вблизи магнитного перехода), а также экономит время эксперимента.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведена модернизация конструкции криостата замкнутого цикла, предназначенного для мессбауэровских исследований в диапазоне температур 3–420 К. Модернизация включала в себя разработку и установку нового штока с держателем исследуемого образца с применением шарнирного подвеса, установку нового стола для спектрометра и штока, модификацию виброизолирующей манжеты из гофрированной резины, замену криоголовки. Создана программа tStat-2021 для автоматизации управления температурой исследуемого образца. В результате модернизации уширение резонансных мессбауэровских

линий при низкотемпературных измерениях, до 5 К, удалось уменьшить с 15% до 4%.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны к.ф.-м.н. П.Г. Наумову за помощь и обсуждение результатов работы.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, проект № 19-29-12016/21-мк, в части мессбауэровских исследований кристалла FeVO_3 . Пусконаладочные работы модернизированного мессбауэровского криостата и ядерно-резонансные измерения стандартных поглотителей были выполнены при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках выполнения работ по государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Li X., Zhu K., Pang J., Tian M., Liu J., Rykov A.I., Zheng M., Wang X., Zhu X., Huang Y., Liu B., Wang J., Yang W., Zhang T. // Appl. Catal. B Environ. 2018. V. 224. P. 518.
<https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.11.004>
2. Tombácz E., Turcu R., Socoliuc V., Vékás L. // Biochem. Biophys. Res. Commun. 2015. V. 468. № 3. P. 442.
<https://doi.org/10.1016/j.bbrc.2015.08.030>
3. Oshtrakh M.I. // Cell Biochem. Biophys. 2019. V. 77. № 1. P. 15.
<https://doi.org/10.1007/s12013-018-0843-8>
4. Chuev M.A., Cherepanov V.M., Deyev S.M., Mischenko I.N., Nikitin M.P., Polikarpov M.A., Panchenko V.Y. // AIP Conference Proceedings. 2010. V. 1311. P. 322.
<https://doi.org/10.1063/1.3530033>
5. Rusakov V.S., Pokatilov V.S., Sigov A.S., Matsnev M.E., Gubaidulina T.V. // JETP Lett. 2014. V. 100. № 7. P. 463.
<https://doi.org/10.1134/S0021364014190102>
6. Kuzmann E., Homonnay Z., Klencsár Z., Szalay R. // Molecules. 2021. V. 26. № 4. P. 1062.
<https://doi.org/10.3390/molecules26041062>
7. Maksimova A.A., Klencsár Z., Oshtrakh M.I., Petrova E.V., Grokhovsky V.I., Kuzmann E., Homonnay Z., Semionkin V.A. // Hyperfine Interact. 2016. V. 237. № 1. P. 33.
<https://doi.org/10.1007/s10751-016-1218-4>
8. Sumanov V.D., Aksyonov D.A., Drozhzhin O.A., Presnikov I., Sobolev A.V., Glazkova I., Tsirlin A.A., Rupasov D., Senyshyn A., Kolesnik I.V., Stevenson K.J., Antipov E., Abakumov A.M. // Chem. Mater. 2019. V. 31. № 14. P. 5035.
<https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.9b00627>
9. Shen G., Mao H.K. // Reports Prog. Phys. 2017. V. 80. № 1. P. 016101.
<https://doi.org/10.1088/1361-6633/80/1/016101>
10. Williams J.M. // Cryogenics (Guildf). 1975. V. 15. № 6. P. 307.
[https://doi.org/10.1016/0011-2275\(75\)90077-6](https://doi.org/10.1016/0011-2275(75)90077-6)

11. Micke P., Stark J., King S.A., Leopold T., Pfeifer T., Schmöger L., Schwarz M., Spieß L.J., Schmidt P.O., Crespo López-Urrutia J.R. // *Rev. Sci. Instrum.* 2019. V. 90. № 6. P. 065104.
<https://doi.org/10.1063/1.5088593>
12. Ekin J. *Experimental techniques for low-temperature measurements: cryostat design, material properties and superconductor critical-current testing.* NY.: Oxford U. Press, 2006. ISBN 978-0-19-857054-7.
<https://doi.org/10.1063/1.2743130>
13. Gifford W.E. *Advances in Cryogenic Engineering.* Boston, MA: Springer US, 1966. P. 152–159.
14. D'Addabbo A., Bucci C., Canonica L., Di Domizio S., Gorla P., Marini L., Nucciotti A., Nutini I., Rusconi C., Welliver B. // *Cryogenics (Guildf).* 2018. V. 93. P. 56.
<https://doi.org/10.1016/j.cryogenics.2018.05.001>
15. Ikushima Y., Li R., Tomaru T., Sato N., Suzuki T., Haruyama T., Shintomi T., Yamamoto A. // *Cryogenics (Guildf).* 2008. V. 48. № 9–10. P. 406.
<https://doi.org/10.1016/j.cryogenics.2008.04.001>
16. Boolchand P., Lemon G.H., Bresser W.J., Enzweiler R.N., Harris R. // *Rev. Sci. Instrum.* 1995. V. 66. № 4. P. 3051.
<https://doi.org/10.1063/1.1145528>
17. Olivieri E., Billard J., De Jesus M., Juillard A. Leder A. // *Nucl. Instrum. and Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 2017. V. 858. P. 73.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.03.045>
18. Наумов П.Г., Любутин И.С., Фролов К.В., Демидов Е.И. // *ПТЭ.* 2010. № 5. С. 158.
19. Криомагнитные системы tSTAT310x. URL: http://cryo.ru/index.php?option=com_content&task=view&id=72&lang=ru.
20. Courts S.S. // *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.* 2017. V. 278. № 1. P. 012076.
<https://doi.org/10.1088/1757-899X/278/1/012076>
21. Matsnev M.E., Rusakov V.S. // *AIP Conference Proceedings.* 2012. V. 1489. P. 178.
<https://doi.org/10.1063/1.4759488>
22. Yagupov S., Strugatsky M., Seleznyova K., Mogilenec Y., Snegirev N., Marchenkov N.V., Kulikov A.G., Eliovich Y.A., Frolov K.V., Ogarkova Y.L., Lyubutin I.S. // *Cryst. Growth Des.* 2018. V. 18. № 12. P. 7435.
<https://doi.org/10.1021/acs.cgd.8b01128>
23. Lyubutin I.S., Snegirev N.I., Chuev M.A., Starchikov S.S., Smirnova E.S., Lyubutina M.V., Yagupov S.V., Strugatsky M.B., Alekseeva O.A. // *J. Alloys Compd.* 2022. V. 906. P. 164348.
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2022.164348>