

02;12
©1993

ГЕЛИЕВЫЙ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЙ ИЗОТОПНЫЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ХИМИЧЕСКИХ СДВИГОВ ПЕРИОДА ПОЛУРАСПАДА ТРИТИЯ

Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, П.М.Шиталиев

Экспериментальное определение характеристик бета-распада трития ${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu}$ сопряжено с рядом принципиальных трудностей: поскольку избыток массы второго нейтрона в ядре трития близок к кулоновской энергии второго протона в ядре гелия, высвобождаемая при распаде тритона энергия мала, что делает экспериментальные значения верхней граничной энергии бета-спектра E_{max} и периода полураспада $T_{1/2}$ весьма чувствительными к структуре электронного фазового пространства вблизи ядра (так называемый эффект химического сдвига E_{max} и $T_{1/2}$). Для рассмотрения аксиально-векторного взаимодействия при бета-распаде тритона и получения оценки времени жизни свободного нейтрона требуются согласованные, т.е. относящиеся к источнику определенной химической структуры, значения E_{max} и $T_{1/2}$.

Постоянный интерес, проявляемый в последние годы к проблеме массы покоя нейтрино, заставил достаточно точно измерить E_{max} для ряда тритийсодержащих химических соединений, однако неопределенность химических сдвигов не позволяет согласовать полученный набор значений E_{max} со значениями $T_{1/2}$, измеренными для тритированных соединений другой химической структуры. Разработка методов прямого измерения вариаций периода полураспада, обусловленных модификацией электронного окружения тритона, и получение экспериментальных данных о химических сдвигах будут способствовать развитию теории взаимодействия β -электрона в конечном состоянии и, в частности, решению проблемы согласования значений E_{max} и $T_{1/2}$.

Предварительные теоретические оценки дают значения химических сдвигов периода полураспада (или постоянной полураспада $\lambda = (\ln 2)/T_{1/2}$) в пределах $0.1 \div 0.7\%$ [1,2]. Для измерения вариаций постоянной распада такого масштаба весьма перспективным представляется использование предложенного в [3] гелиевого изотопного метода в его дифференциальном варианте.

Как и при определении абсолютного значения постоянной распада [3,4], в дифференциальном методе образец, помимо тритированного соединения некоего типа (i), должен содержать также и стабильный изотоп ^4He . Основной измеряемой величиной будет служить отношение содержания в образце радиогенного ^3He и балластного ^4He , изменяющееся во времени для образца типа i по закону:

$$\frac{^3\text{He}}{^4\text{He}} = \left(\frac{T(t_0)}{^4\text{He}} \right)_i \{1 - \exp[-\lambda(t - t_0)]\}, \quad (1)$$

где t_0 — время начала экспозиции, $(T(t_0)/^4\text{He})_i$ — отношение концентраций трития и гелия-4 при $t = t_0$.

Соотношение (1) справедливо, строго говоря, лишь в том случае, когда содержание ^3He в образце в момент времени t_0 равно нулю, фактически же достаточно, чтобы наличие фонового ^3He возмущало данное равенство меньше, чем статистическая составляющая погрешности измерения отношения $^3\text{He}/^4\text{He}$.

Здесь будут рассматриваться схемы эксперимента, позволяющие реализовать условия, когда отношение $(T(t_0)/^4\text{He})_i$ не зависит от типа образца. В этом случае, поделив для $i = 1, 2$ выражения (1) друг на друга и ограничившись линейным приближением в разложении экспонент в ряд по степеням $\lambda(t - t_0)$, получим уравнение измерения химического сдвига постоянной распада $\Delta\lambda = \lambda_1 - \lambda_2$ в виде:

$$\frac{(^3\text{He}/^4\text{He})_1}{(^3\text{He}/^4\text{He})_2} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda_2} + 1. \quad (2)$$

Под измерением $\Delta\lambda$ будем понимать экспериментальную процедуру, позволяющую определить химический сдвиг, превышающий 0.1%, с погрешностью $\sim 10\%$ или меньшей — такой точности измерения достаточно для решения основных проблем теории химического сдвига. Из выражения (2) следует, что удовлетворять вышеприведенным требованиям дифференциальный гелиевый метод будет в том случае, если погрешность определения отношения, стоящего в левой части (2), составит $\sim 0.01\%$.

Указанная точность относительных измерений гелиевых изотопных отношений была достигнута при определении гелиевым методом абсолютного значения периода полураспада для молекулярного трития [3,4]. Измерения изотопных отношений проводились на двухлучевом магнитном резонансном масс-спектрометре; операции по созданию и хранению тритированных образцов контролировались пропорциональными счетчиками с чувствительностью ~ 0.01 Бк.

Достаточное для проведения прецизионных масс-спектрометрических измерений изотопного отношения количество радиогенного ${}^3\text{He}$ составляет $\sim 10^{13}$ атомов и может быть накоплено за время порядка $10 \div 15$ часов в образце, имеющем активность $(2 \div 3) \cdot 10^8$ Бк. Нетрудно убедиться, что систематическая погрешность, вносимая в правую часть соотношения (2) при отбрасывании членов высших порядков в разложении экспонент, не превышает 0.001% при $(t-t_0) \leq 24$ ч и, следовательно, уравнение (2) действительно является корректным уравнением измерения для величины $\Delta\lambda$. В общем случае оно приобретает вид:

$$\frac{({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_1}{{}^3\text{He}/{}^4\text{He}}_2 = \frac{\tau_1}{\tau_2} \left(\frac{p\Delta\lambda}{\lambda_2} + 1 \right). \quad (3)$$

Здесь учтено, что время экспонирования первого образца τ_1 может отличаться от времени экспонирования второго образца τ_2 . Очевидно, что погрешность вычисления отношения τ_1/τ_2 должна быть не больше погрешности определения левой части выражения (3), т.е. не превышать 0.01% — требование, вполне выполнимое при $\tau_1 \simeq \tau_2 > 10$ ч.

Простейшая схема эксперимента предполагает создание в момент времени t_0 двух образцов идентичного состава и последующее воздействие на один из них (например, первый) с целью изменения состояния электронного окружения ядра трития. Безразмерный параметр p в соотношении (3) определяет, какая доля распадов в образце 1 действительно происходила с постоянной λ_1 , отвечающей распаду тритона в модифицированном электронном окружении. Тот факт, что необходимое время экспозиции исчисляется часами, позволяет использовать весьма разнообразные методы модификации электронного окружения тритона — это могут быть ионизация и диссоциация тритированного соединения в газовом разряде, реакция изотопного водородного обмена, избирательное возбуждение сложных тритированных молекул квантами света. В зависимости от способа воздействия на образец значение параметра p будет определяться соответственно: степенью диссоциации и временем существования разряда, константой равновесия реакции изотопного обмена, временем жизни возбужденных состояний и т.д. Может быть показано, что в любом из перечисленных случаев параметр p будет входить в уравнение измерения именно как коэффициент при $\Delta\lambda$. Последнее означает, что для измерения $\Delta\lambda$ в вышеуказанном смысле значение p достаточно определить с погрешностью порядка нескольких процентов. Этот же вывод может быть сделан и в отношении входящей в выражение (3) абсолютной величины постоянной распада.

В качестве исходного тритированного соединения в готовящихся сейчас экспериментах предполагается использовать молекулярный тритий. В качестве оценки его периода полураспада — величину $T_{1/2} = 12.296$ г — среднее взвешенное двух последних по времени опубликования и хорошо согласующихся между собой значений периода полураспада для молекулярного трития, одно из которых получено изотопно-гелиевым методом [4], другое — по кривой распада, снятой методом регистрации тормозного излучения [5].

Планируемый цикл экспериментов имеет целью получение серии значений химических сдвигов периода полураспада для ряда определенных состояний электронного окружения тритона. На основании этих данных предполагается описать величину сдвига как функцию структуры доступного β -электрону атомного фазового пространства. Такое представление химического сдвига явилось бы, в частности, основой для развития нового метода идентификации электронных состояний водородосодержащих веществ.

Список литературы

- [1] *Budick B.* // *Phys. Rev. Lett.* 1983. V. 51. N 12. P. 1034–1037.
- [2] *Друкарев Е.Г., Стрикман М.И.* // *ЖЭТФ.* 1986. Т. 91. В. 4(10). С. 1160–1171.
- [3] *Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Хабарин Л.В., Юденич В.С.* // *ЖТФ.* 1987. Т. 57. В. 2. С. 291–294.
- [4] *Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Хабарин Л.В. и др.* // *Письма в ЖТФ.* 1988. Т. 14. В. 10. С. 940–942.
- [5] *Budick B., Chen Jianshen, Lin Hong.* // *Phys. Rev. Lett.* 1991. V. 67. N 19. P. 2630–2633.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе РАН
С.-Петербург

Поступило в Редакцию
23 июля 1993 г.